

UNIVERSITÉ DE SHERBROOKE

Faculté de génie

Département de génie chimique et de génie biotechnologique

PRÉDICTION DE PROFILS D'ÉCOULEMENT GRANULAIRE ET DE LA CONTRAINTE NORMALE EN FONCTION DES PROPRIÉTÉS DE FRICTION

Thèse de doctorat

Spécialité : génie chimique

Oumaima Chaib

MEMBRES DU JURY

Nicolas Abatzoglou
Directeur

Ryan Gosselin
(Co-directeur)

Saïd Elkoun
(Évaluateur)

Ines Esma Achouri
(Rapportrice)

Olivier Lecoq
(Évaluateur)

À ma famille, particulièrement mes chers parents, mon époux et mes deux amours Amir et Yanis.

RÉSUMÉ

Les matériaux granulaires sont omniprésents dans plusieurs industries, dont l'industrie alimentaire, chimique, l'agriculture et la construction. Malgré leur importance pratique, la compréhension de leurs caractéristiques d'écoulement fait toujours l'objet d'une attention considérable au cours des 50 dernières années. Les travaux présentés ici portent sur le développement de nouvelles approches pour (1) prédire le profil radial de vitesse d'écoulement granulaire à l'intérieur de trémies symétriques coniques en fonction des propriétés de friction et (2) prédire les profils axial et radial de la contrainte normale « σ_v » en fonction de la vitesse d'écoulement prédit dans (1).

Le premier objectif portait sur le développement d'une équation semi-empirique pour prédire le profil de vitesse d'écoulement en se basant sur l'équation du profil d'écoulement radial utilisée pour les fluides classiques. Il y parvient en introduisant l'effet des propriétés de friction sous forme d'angles de friction internes (particules-particules) et externes (particules-parois). Le profil de vitesse a été évalué expérimentalement en fonction de la distribution du temps de résidence moyen (RTD) d'un système granulaire binaire pendant son écoulement gravitationnel par spectroscopie proche infrarouge (NIRS). Les résultats ont montré un bon accord entre le profil expérimental et le profil semi-empirique proposé, et la vitesse d'écoulement des systèmes granulaires est inversement proportionnelle à la position radial « r » de la trémie avec une valeur minimal qui n'est pas nulle aux parois.

Le deuxième objectif portait sur le développement d'un nouveau modèle mathématique reliant le profil radial et axial de contraintes normales aux profils de vitesse d'écoulement développés dans la première partie de ce travail. Pour cela, la méthodologie utilisée consistait à étudier le bilan de forces pendant l'écoulement gravitationnel à l'intérieur de trémies coniques, inspirée de l'analyse de *Janssen* pour les silos cylindriques. Le développement a été complété par l'équation de deuxième loi de *Newton* sur le principe fondamental de la dynamique. Le modèle proposé dans cette partie est en accord avec la littérature disponible sur les profils de contrainte normale.

Mots clés : Écoulement des systèmes granulaires, profil radial de vitesse, contrainte normale.

REMERCIEMENTS

Je tiens à remercier énormément mon directeur de recherche, le Professeur Nicolas Abatzoglou, qui m'a si bien encadré tout au long de cette thèse. Qu'il soit aussi remercié pour sa gentillesse, sa disponibilité permanente et pour les nombreux encouragements qu'il m'a prodigué.

Je tiens à exprimer aussi ma reconnaissance et toute ma gratitude à mon co-directeur de recherche le Professeur Ryan Gosselin, pour m'avoir tant appris et si bien guidé pour la réalisation de ce projet de recherche.

Je remercie aussi la Professeure Inès Esma Achouri pour ses conseils et sa contribution importante à mon projet.

Je tiens à remercier également toutes les personnes qui m'ont apporté un soutien technique contribuant à la bonne réalisation de mon projet : Henri Gauvin, Jacques Gagné, Serge Gagnon et Marc couture.

Finalement, je tiens à remercier mes très chers parents, mes sœurs, mon frère, ma belle-famille et mes amis pour avoir toujours su m'encourager toutes ces longues années. Un grand merci à mon époux pour son soutien inconditionnel et son appui continu.

TABLE DES MATIÈRES

Chapitre 1 INTRODUCTION	1
1.1 Mise en contexte et problématique	1
1.2 Question de recherche	2
1.3 Objectifs du projet de recherche	3
1.4 Contributions originales	4
1.5 Plan du document	4
Chapitre 2 ÉTAT DE L'ART	7
2.1 Poudres à écoulement libre	7
2.2 Type d'écoulement granulaire	7
2.2.1 Écoulement en masse	8
2.2.2 Écoulement tunnel (entonnoir)	9
2.3 Critères d'écoulement au seuil - Cercle de Mohr	11
2.5 Transmission des contraintes à l'intérieur de silos de poudres granulaires	14
2.6 Profil de vitesse d'écoulement gravitationnel	20
2.7 Distribution du temps de résidence	23
2.8 Problématiques liées à l'écoulement granulaire	25
2.8.1 Définition, causes et conséquences	25
2.8.2 Mécanisme de ségrégation particulaire	27
Chapitre 3 APPROCHE PROPOSÉE ET MÉTHODOLOGIE	29
3.1 Approche proposée	29
3.2 Plan expérimental	30
Chapitre 4 PREDICTION DU PROFIL RADIAL DE LA VÉLOCITÉ D'ÉCOULEMENT GRANULAIRE	35
4.1 Avant-propos	35
4.2 Gravity mass powder flow through conical hoppers Part I: A mathematical model predicting the radial velocity profiles of free-flowing granular systems as a function of cohesion and adhesion properties	37
4.2.3 Theoretical development	42
4.2.4 Materials and Methods	44
4.2.5 Results and Discussion	53

Chapitre 5 PREDICTION DU PROFIL AXIAL ET RADIAL DE LA CONTRAINTE NORMALE	65
5.1 Avant-propos.....	65
5.2 Gravity mass powder flow through conical hoppers part II: A mathematical model predicting the axial and radial profiles of normal stresses from flow velocity measurements	67
5.2.1 Abstract.....	67
5.2.2 Introduction.....	68
5.2.3 Analysis of the applies forces inside conical hoppers	73
5.2.4 Application of the proposed mathematical model	78
Chapitre 6 CONCLUSION	91
6.1 Conclusion générale	91
6.2 Propositions pour travaux futures.....	92

LISTE DES FIGURES

Figure 2.1 Dynamique d'écoulement granulaire. (a) écoulement massique,	9
Figure 2.2 Régime d'écoulement granulaire en fonction de la conception graphique de Jenike (Ketterhagen et al., 2009)	10
Figure 2.3 Critère de Coulomb - Courbe d'écoulement au seuil	11
Figure 2.4 Classification des écoulements en fonction de la fonction d'écoulement ff_c . La courbe (A) représente la fonction d'écoulement de la poudre A (Dietmar Schulze et al., 2008)	13
Figure 2.5 Forces exercées sur une tranche de poudre dans un silo selon Janssen (Rhodes, 2008)	15
Figure 2.6 Distribution qualitative de la contrainte normale σ_v et la contrainte normale au parois σ_v en fonction de la hauteur du système granulaire. (a) représente l'état statique et (b) représente l'état dynamique (Dietmar Schulze et al., 2008)	19
Figure 2.7 Courbe de concentration du traceur en fonction du temps	24
Figure 3.1 Équipement trémie-guillotine-sonde NIR	31
Figure 4.1 Jenike chart design for a conical hopper (Ketterhagen, Curtis, Wassgren, & Hancock, 2009)	39
Figure 4.2 Graphical presentation of the Equation (4.6)	43
Figure 4.3 Equipment set-up. A conical hopper, B NIR probe, C guillotine system, D collector.	45
Figure 4.4 Schematic representation of the experimental protocol	46
Figure 4.5 Size distribution of granular systems.	47
Figure 4.6 Schematic view of a collector. The axes A, B and C represent the radial positions along the diameter of the collector	49
Figure 4.7 NIRS of pure DCP, lactose and their standard mixtures.	50
Figure 4.8 Effect of the humidity on the friction angles of lactose and DCP powders. (a) Internal friction angle. (b) Wall friction angle	51
Figure 4.9 Residence time versus radial position as function of DCP height	54
Figure 4.10 Axial profile of lactose concentration vs. guillotine opening	55
Figure 4.11 Radial residence time profile as function of conical hopper angle	56
Figure 4.12 Radial velocity profile as function of conical hopper angle of DCP-Lactose binary system	57
Figure 4.13 Radial velocity profile as function of conical hopper angle of CaCO ₃ -Lactose binary system	60
Figure 5.1 Janssen model for cylindrical hoppers. Adapted from (Dietmar Schulze et al., 2008)	69
Figure 5.2 Qualitative distribution of the normal stress and the wall stress as a function of the axial position (D. Schulze, 2008)	71
Figure 5.3 Stresses applied on an annular differential volume of powder inside a symmetrical conical hopper	74

Figure 5.4 Mean normal stress axial profile vs. powder height (h) for DCP/Lactose binary system (Ra=0.28μm).....	82
Figure 5.5 Mean normal stress axial profile vs. axial distance (h) for CaCO ₃ /Lactose binary system.....	82
Figure 5.6 Normalized $\frac{\partial \sigma_v}{\partial r}$ vs. Radial position and its central value for DCP/Lactose.....	85
Figure 5.7 Normalized $\frac{\partial \sigma_v}{\partial r}$ vs. Radial position and its central value for CaCO ₃ /Lactose. ..	88
Figure 6.1 Disques noirs pour le test de la surface analysée par la sonde NIR.....	96
Figure 6.2 Spectre d'absorption des dix points noirs en fonction de leur diamètre	97

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 2.1 Comparaison des différents modes d'écoulement.....	8
Tableau 2.2 Modèles de prédiction des contraintes verticales et de parois dans les états statique et dynamique	18
Tableau 2.3 Différents modèles de la fonction $f(\theta)$ rapportés dans la littérature	20
Tableau 4.1 Quantity of powder in the third layer.....	48
Tableau 4.2 Height and quantities of powders inside the hopper.....	55
Tableau 4.3 Mass flow index of the DCP/lactose binary system as a function of the conical angle.....	58
Tableau 4.4 Friction angles of the granular materials.....	58
Tableau 4.5 Model parameter values for DCP/lactose and CaCO_3 /lactose (95% confidence intervals).....	59
Tableau 4.7 ANOVA for powder type and hopper angle on ω	61
Tableau 4.8 ANOVA for binary granular system type and hopper angle on ζ	62
Tableau 5.1 Velocity radial profile values ($\times 10^{-3}$ m/s). Radial position 1 represents the wall, whereas position 9 represents the centerline	79
Tableau 5.2 ω parameter values of Equation (5) (95% confidence intervals)	80
Tableau 5.3 Properties of granular systems.....	81

LISTE DES SYMBOLES

U_{wall} : Vitesse aux parois (mm/s)

$U_{centerline}$: Vitesse au centre de l'atémie (mm/s)

W : Débit massique (kg/s)

C : coefficient de Beverloo

ρ_{bulk} : Densité apparente (kg/m³)

g : Accélération gravitationnelle (m/s²)

D_h : Diamètre nominal de la sortie de trémie (m)

D_0 : Diamètre de la sortie de trémie (m)

d_p : Diamètre des particules (m)

α : Angle de trémie (°)

$U(r)$: Vitesse radiale (mm/s)

ω, ζ : Paramètres de l'équation proposée (Équation 4.5)

r : Position radial (mm)

R : Rayon de la trémie en fonction de la position axiale (mm)

δ : Angle de friction interne (°)

t : Temps d'ouverture de la guillotine (ms)

h : Hauteur de la poudre à l'intérieur de la trémie (mm)

ϕ_w : Angle de friction entre la poudre et parois (°)

σ_h : Contrainte horizontale (Pa.)

k_j : Coefficient de Janssen

σ_v : Contrainte normale (Pa.)

σ_f : Contrainte de friction avec les parois (Pa.)

λ : Ratio de contrainte latérale

ψ : Angle between the wall and the major principal plane (°)

$C(t)$: Concentration de la poudre pulsée à l'ouverture de la trémie en fonction du temps d'écoulement (% w/w)

LISTE DES ACRONYMES

MFI: *Mass flow index*

NIRS: *Near infra-red spectroscopy*

RTD: *Residence time distribution*

ff_c: *Flow function*

Chapitre 1 INTRODUCTION

1.1 Mise en contexte et problématique

Les matériaux granulaires sont omniprésents dans plusieurs productions industrielles, soit alimentaire, métallurgique, cosmétique ou pharmaceutique. Cette dernière industrie en utilise beaucoup dans la fabrication de différentes formes de médicament tels que les comprimés et les capsules. La production de ces formes pharmaceutiques nécessite plusieurs étapes de manipulation, comme le stockage, le mélange, le transport, le remplissage. Pendant ces étapes, l'homogénéisation des mélanges à un niveau de contrôle de l'ordre d'une dose médicamenteuse (ex. la quantité utilisée pour une pilule) est importante afin d'assurer une uniformité de dose et s'assurer que l'étiquette du médicament est respectée dans le sens de la norme acceptable pour chaque production industrielle. Une fois l'homogénéité requise atteinte lors de l'étape du mélange, un écoulement est nécessaire pour un remplissage uniforme des matrices de compression ou de capsules. Cependant, dans la pratique, l'homogénéité d'un mélange granulaire multi- composants reste difficile à atteindre à cause de sa cinétique qui est toujours accompagnée d'un processus de dé-mélange qu'on dénomme « ségrégation »; ainsi, tout mouvement peut entraîner un nouvel état 'ségrégation/mélange homogène'. De plus, les constituants du mélange granulaire ont des caractéristiques physiques très variées au niveau de la taille, la forme, la surface, la densité, la porosité et les forces d'interaction (forces capillaires, forces électrostatiques, forces de frottement, forces de Van der Waals) qui procurent une complexité au processus d'écoulement granulaire (Deng et al., 2010). La compréhension de ces propriétés est importante pour évaluer le comportement des écoulements granulaires.

Plusieurs travaux de recherche, expérimentaux et semi-théoriques, proposent des outils de prédiction du profil des écoulements des systèmes granulaires, et, ainsi, évaluer leur tendance à la ségrégation. La prédiction expérimentale repose principalement sur le suivi du chemin d'un constituant granulaire appelé traceur, le long de son passage dans un lit granulaire; ce traceur doit présenter plus ou moins les mêmes caractéristiques que le système granulaire étudié afin de refléter le comportement de ce dernier tout en étant détectable par des méthodes analytiques appropriées, appelées PAT « *Process Analytical Technology* » tels que : la méthode

photographique (Albaraki & Antony, 2014; Bridgwater, 2012; Maiti, Das, & Das, 2016), spectroscopie infrarouge (Castellanos Gil, Gosselin, & Abatzoglou, 2012; Sarraguça et al., 2010) ainsi que les rayons X et γ (Knodel, Tan, & Fwa, 1991). Les traceurs peuvent également être des particules colorées, radio-isotopiques ou magnétiques (Artoni, Zugliano, Primavera, Canu, & Santomaso, 2011; Gupta, Nag, & Tathavadkar, 2012; I. Sielamowicz, Blonski, & Kowalewski, 2005). Quant à la prédiction théorique, deux modèles mathématiques ont été proposés dans la littérature; Le premier modèle est appelé « *Kinematic model* », il contient un coefficient inconnu, largement discuté par plusieurs chercheurs en fonction des propriétés granulaires (Choi, Kudrolli, & Bazant, 2005; Medina, Córdova, Luna, & Treviño, 1998; Mullins, 1974; Nedderman & Tüzün, 1979; Samadani, Pradhan, & Kudrolli, 1999). Le deuxième modèle a été décrit par Cleaver et Nedderman (Cleaver & Nedderman, 1993a). Malheureusement, la majorité des solutions analytiques proposées pour ce modèle n'étaient pas reproductibles expérimentalement (Generalov, 1985; Polderman, Boom, De Hilster, & Scott, 1987).

La compréhension de la distribution de contraintes agissant à l'intérieur d'un système granulaire est très importante pour assurer la stabilité du système à l'intérieur d'un silo ou une trémie conique. Toutefois, le bilan de forces agissant à l'intérieur d'un silo diffère complètement de celui d'une trémie conique se trouvant dans un état statique ou un état dynamique. Cependant, ce domaine de prédiction du profil de vitesse d'écoulement et de contraintes agissant sur un système granulaire continue à présenter un défi dans la pratique à cause de la complexité et l'instabilité du comportement des systèmes granulaires.

1.2 Question de recherche

Dans des travaux précédents réalisés par notre équipe de recherche (Benedetti et al., 2007; Castellanos Gil et al., 2012), il a été démontré que le profil d'écoulement gravitaire d'un mélange granulaire peut être évalué avec succès par la spectroscopie proche-infrarouge (NIRS). La méthodologie dans ce contexte est basée sur la distribution du temps de résidence moyen (RTD), mesurée à partir de la méthode de « *injection impulse* » utilisée dans le domaine de génie des réacteurs.

La prédiction du profil radial d'écoulement des fluides classiques est relativement facile pour un régime d'écoulement laminaire. L'équation mise en œuvre dans ce contexte indique que le profil de vitesse radiale est parabolique, avec une valeur maximale au centre de la conduite et zéro aux parois. L'écoulement gravitaire des systèmes granulaires est beaucoup plus complexe et difficile à prédire à cause, notamment, des forces d'adhésion et de cohésion et de la géométrie de trémies utilisées (ex. le diamètre d'ouverture de la sortie et l'angle d'inclinaison spécialement pour les trémies coniques). C'est pourquoi, l'équation utilisée pour les fluides classiques ne peut être utilisée pour les systèmes granulaires. À partir de ceci vient la question de recherche au cœur de la première partie de ce projet de recherche :

Comment peut-on adapter l'équation du profil radial des fluides classiques à la réalité d'écoulement des systèmes granulaires?

L'écoulement des systèmes granulaires dépend également de la distribution de contraintes appliquées. Cependant, cette dernière dépend fortement de la géométrie du contenant (ex. silos, trémie). En effet, l'analyse de *Janssen* qui s'intéresse à la distribution de contraintes agissant dans un système granulaire statique à l'intérieur de silo diffère complètement de la distribution de contraintes dans des trémies coniques. D'où vient la question de recherche au cœur de la deuxième partie de ce projet de recherche :

Comment peut-on prédire le profil de la contrainte normale agissant dans une trémie conique symétrique en fonction de la vitesse d'écoulement prédit dans la première partie?

1.3 Objectifs du projet de recherche

Le présent projet de recherche consiste à étudier l'écoulement gravitaire des systèmes granulaires binaires à travers des trémies de dimensions connues. Il porte sur le développement de nouvelles approches pour :

(1) prédire le profil radial de vitesse d'écoulement granulaire dans une trémie conique symétrique,

(2) prédire les profils axial et radial de la contrainte normale « σ_v » en fonction de la vitesse d'écoulement prédit dans (1). Pour atteindre ces objectifs, les aspects suivants ont été abordés :

- ✓ Développer une équation semi-empirique pour prédire le profil d'écoulement gravitaire en fonction des propriétés frictionnelles,
- ✓ Mettre en place un plan expérimental assurant une reproductibilité des tests d'écoulement granulaire en minimisant l'effet des facteurs externes,
- ✓ Valider expérimentalement le modèle mathématique proposé en variant:
 - L'angle d'inclinaison de trémie
 - Le type du mélange binaire
 - La rugosité des parois internes de la trémie
- ✓ Étudier le bilan de forces appliquées dans une trémie conique symétrique.

1.4 Contributions originales

Ce travail de recherche a abouti à une nouvelle équation théorique qui permettra de prédire le profil d'écoulement à travers des trémies symétriques coniques. Tant d'un point de vue scientifique qu'industriel, la présente équation contribuera à la définition du régime d'écoulement, massique ou tunnel, et ainsi sa tendance à la ségrégation en fonction de la valeur de la dérivée radiale de la vitesse ($\partial u / \partial r$). De plus, la nouvelle analyse de l'ensemble de forces appliquées à l'intérieur d'une trémie conique, étudiée dans le présent travail donne une nouvelle vision complète et détaillée sur le bilan de forces sans négliger l'effet important de l'angle de trémie.

1.5 Plan du document

En plus de ce chapitre qui permet d'établir une mise en contexte, et une vue générale sur ce projet de recherche, ce document comporte :

- ✓ **Chapitre 2** : Il consiste en un état de l'art, présentant une vision globale sur les systèmes granulaires, leurs comportements d'écoulement, les contraintes agissant dans un système granulaire et les phénomènes résultants.
- ✓ **Chapitre 3** : Article scientifique 1, publié dans le journal « *The Canadian journal of chemical engineering* ».
- ✓ **Chapitre 4** : Article scientifique 2, publié dans le journal « *The Canadian journal of chemical engineering* ».
- ✓ **Chapitre 5** : Il comporte les principales conclusions et perspectives.

Chapitre 2 ÉTAT DE L'ART

Dans la littérature, plusieurs types de classification des systèmes granulaires existent. Un seul d'entre eux suffira pour les classer dans le présent travail, en tenant compte de leurs tailles et des forces agissant sur le système. On distingue deux types :

2.1 Poudres à écoulement libre

Leur taille moyenne est généralement supérieure à 100 μm . Ces poudres s'écoulent très facilement mais vu que la grande mobilité individuelle des particules (les forces de gravité sont plus importantes que les forces de cohésion), elles ont une grande tendance à se ségréger dans le cas d'un mélange granulaire hétérogène.

2.2 Type d'écoulement granulaire

Habituellement, les écoulements des systèmes granulaires sont classés en fonction de leur facilité à l'écoulement en se basant sur l'énergie exercée sur les particules. On parlera donc, d'écoulement gravitationnel, fluidisé, vibratoire, forcé mécaniquement et à compression. Dans le présent travail, seulement l'écoulement gravitationnel va être étudié.

Un écoulement à partir d'une trémie ou à travers une ouverture en présence de la gravité est dit écoulement gravitaire. La fluidité de ce dernier dépend principalement de l'angle d'inclinaison de la trémie et le diamètre de l'orifice de la sortie.

Contrairement aux écoulements laminaires, transitoires et turbulents des fluides classiques, l'écoulement granulaire est défini par deux principales dynamiques : Écoulement massique « *mass flow* » et écoulement tunnel « *funnel flow* ». Le Tableau 2.1 regroupe les principales caractéristiques de ces deux types d'écoulement granulaire.

Tableau 2.1 Comparaison des différents modes d'écoulement

Caractéristiques	Écoulement massique	Écoulement tunnel
Zones mortes (stagnantes)	Non (+)	Oui (-)
Distribution de temps de stockage	Régulière (+)	Irrégulière (-)
Ségrégation lors de la vidange	Faible (+)	Oui (-)
Capacité de stockage	Plus petite (-)	Plus grande (+)
Abrasion des parois	Élevée (-)	Faible (+)

(+) constitue un avantage, (-) constitue un inconvénient.

2.2.1 Écoulement en masse

C'est le cas d'écoulement recherché, où toute la matière s'écoule d'une façon ordonnée à l'intérieur d'un moyen de transport selon la Figure 2.1 (a), ce qui ressemble en quelque sorte à l'écoulement laminaire des fluides classiques (Rhodes, 2008). Les avantages de ce type d'écoulement par rapport à l'écoulement tunnel sont les suivants:

- ✓ Les contraintes développées sont généralement faibles, ce qui donne une faible compaction de la poudre,
- ✓ La densité apparente est constante tout au long de l'écoulement et pratiquement indépendante de la hauteur de la trémie,
- ✓ Pas de zone stagnante « *first-in-first-out* »
- ✓ Le temps de résidence des poudres à l'intérieur d'un moyen de transport est court par rapport au cas de l'écoulement tunnel, et ainsi les mélanges de poudres sont beaucoup moins ségrégatifs.

Le seul inconvénient de l'écoulement massique est la friction de la poudre en mouvement avec les parois du contenant. Si cette dernière est importante, elle peut résulter une abrasion des parois

suivie par une contamination de la poudre par le matériau de construction. Dans ce cas un moyen de transport de poudres spécifique doit être conçu afin d'éviter ce type problème.

2.2.2 Écoulement tunnel (entonnoir)

Dans ce cas, l'écoulement granulaire a une trajectoire plutôt aléatoire voire, désordonné et ressemble d'avantage à un écoulement turbulent dans le cas des fluides classiques (Abatzoglou & Simard, 2005). La Figure 2.1 (b) illustre la présence des zones stagnantes près de la paroi de la trémie qui entoure une partie centrale de particules qui se déplace vers la sortie de la trémie. De plus, l'effet « *first-in-not-necessarily-first-out* » peut affecter l'écoulement granulaire et favorise ainsi le phénomène de ségrégation particulière en cas de mélange granulaire.

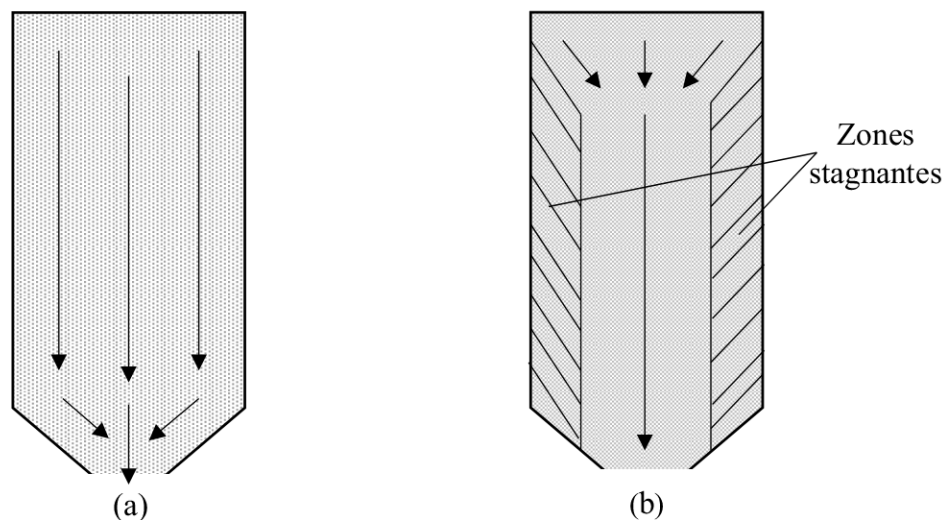


Figure 2.1 Dynamique d'écoulement granulaire. (a) écoulement massique,
(b) écoulement tunnel

Selon plusieurs études scientifiques, numériques et expérimentales, il est possible de prédire le type d'écoulement granulaire à l'intérieur de trémie en fonction de quelques caractéristiques du

mélange granulaire et de la géométrie de trémie (Ketterhagen, Curtis, Wassgren, & Hancock, 2009; I. Sielamowicz et al., 2005; Irena Sielamowicz, Błoński, & Kowalewski, 2006; Waters & Drescher, 2000; Watson & Rotter, 1996). Parmi les résultats scientifiques les plus utilisés, on trouve la conception graphique de Jenike (Figure 2.2), dans lequel trois paramètres doivent être connus : l'angle de friction interne du matériau δ , l'angle d'inclinaison de trémie α et l'angle de friction particules-parois ϕ_w . Le point d'intersection de ces trois paramètres définit le type d'écoulement (A. Jenike, 1964). Une autre méthode quantitative est aussi utilisée dans le cas de trémie conique appelée indice de débit massique « *MFI: mass flow index* »; cet indice est donné par le rapport entre la composante de vitesse au niveau de la paroi de la trémie U_{parois} et celle au centre de cette dernière U_{centre} (Équation 2.1), une valeur critique de MFI a été fixée à 0.3. En dessus de cette valeur, l'écoulement suit un comportement massique (Johanson, 1964; Ketterhagen et al., 2009).

$$MFI = \frac{U_{parois}}{U_{centre}} \quad (2.1)$$

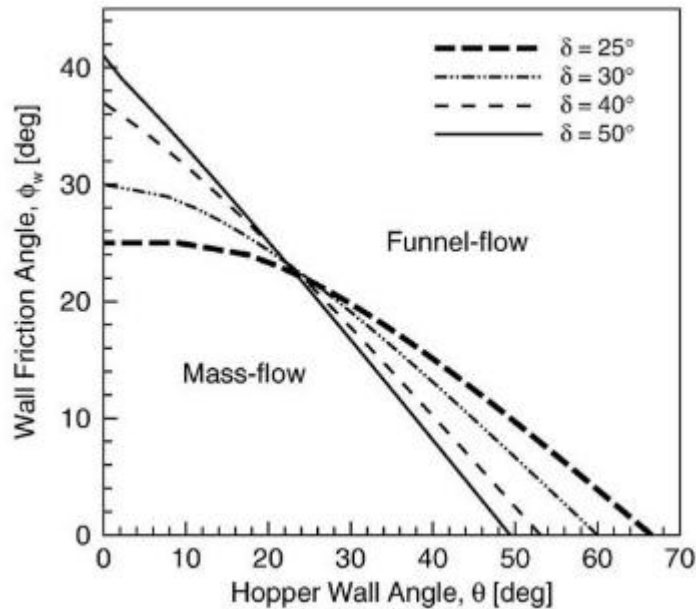


Figure 2.2 Régime d'écoulement granulaire en fonction de la conception graphique de Jenike (Ketterhagen et al., 2009)

2.3 Critères d'écoulement au seuil - Cercle de Mohr

Comme indiqué précédemment dans l'introduction, le premier objectif de cette thèse est de relier le profil radial de vitesse d'écoulement aux propriétés de cohésion et d'adhésion du système granulaire étudié. Pour cela, il est nécessaire de connaître certains critères d'écoulement au seuil représentés par l'équation de Coulomb :

$$\tau = \sigma \tan \delta + C \quad (2.2)$$

Pour une consolidation donnée σ (KPa), τ est la contrainte de cisaillement (KPa), δ est l'angle de friction interne ($^\circ$) et C , l'indice de cohésion. Généralement, cette équation est obtenue expérimentalement à l'aide de cellules de cisaillement (ex. Cellule de Jenike, rhéomètre Freeman FT4) (Dietmar Schulze, Schwedes, & Carson, 2008)

Pour un élément de solide quelconque, les contraintes auxquelles il est soumis peuvent être présentées sous formes de contraintes de consolidation appelées contraintes normales σ (présentées sur l'axe x) et contraintes tangentielles appelées contraintes de cisaillement τ (présentées sur l'axe y). Selon l'état de consolidation initiale du système granulaire, l'ensemble de paires (σ, τ) est mesuré afin de constituer la courbe d'écoulement au seuil selon la Figure 2.3.

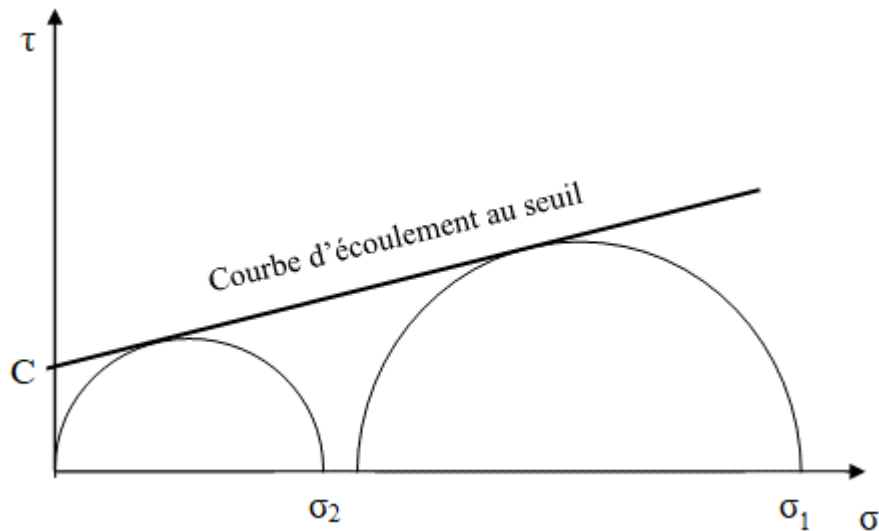


Figure 2.3 Critère de Coulomb - Courbe d'écoulement au seuil

L'intersection droite du cercle de contraintes de Mohr avec l'axe σ représente la contrainte normale maximale appelée la contrainte principale majeure σ_1 qui est égale à σ_v , tandis que la plus petite contrainte normale est appelée la contrainte principale mineure σ_2 qui correspond à σ_h . Lorsque le système granulaire est stocké dans un silo vertical, il est comprimé seulement dans le sens vertical par son propre poids avec aucune déformation dans le sens horizontal (Compression uni-axiale). Ainsi, la contrainte horizontale est plus petite que la contrainte normale (les parois sont supposées sans frottement). Cependant, en réalité, le frottement entre le solide et les parois ne peut être négligé ($\tau \neq 0$). Cela s'applique même dans l'état statique du système, car le solide en vrac est déjà compacté pendant que le silo est rempli et, par conséquent, se déplace un peu vers le bas le long des parois du silo. Ce dernier implique une friction entre le solide et la paroi. Dans ce cas, la contrainte sur la paroi ne peut pas être représentée par la contrainte principale mineure, mais par un point plus ou moins éloigné de l'axe σ . Cependant, dans la section verticale d'un silo, la contrainte horizontale est inférieure à la contrainte verticale, quel que soit l'effet du frottement de la paroi.

La courbe du cercle de Mohr sert aussi à :

1. alculer la fonction d'écoulement d'un système granulaire « ff_c » qui permet de déterminer le type d'écoulement selon la Figure 2.4 (A. Jenike, 1964; Dietmar Schulze et al., 2008). On peut classer l'écoulement en quatre catégories:

- ✓ $ff_c > 10$: écoulement libre;
- ✓ $4 < ff_c < 10$: écoulement aisé;
- ✓ $2 < ff_c < 4$: écoulement difficile (poudres cohésives);
- ✓ $ff_c < 2$: écoulement naturel impossible (poudres très cohésives avec formation de voûtes).

1. L'angle d'inclinaison de la trémie α en fonction de l'angle de friction interne effectif et l'angle de friction de la poudre avec les parois.
2. Le diamètre d'ouverture de la trémie B selon l'équation suivante :

$$B = \frac{\sigma_c H(\alpha)}{\rho g} \quad (2.3)$$

D'où le facteur $H(\alpha)$ est déterminé en fonction de la conicité de la trémie :

$$H(\alpha) = 2 + \frac{\alpha}{60} \quad (2.4)$$

σ_c est la contrainte critique

ρ est la densité apparente de la poudre et g est l'accélération.

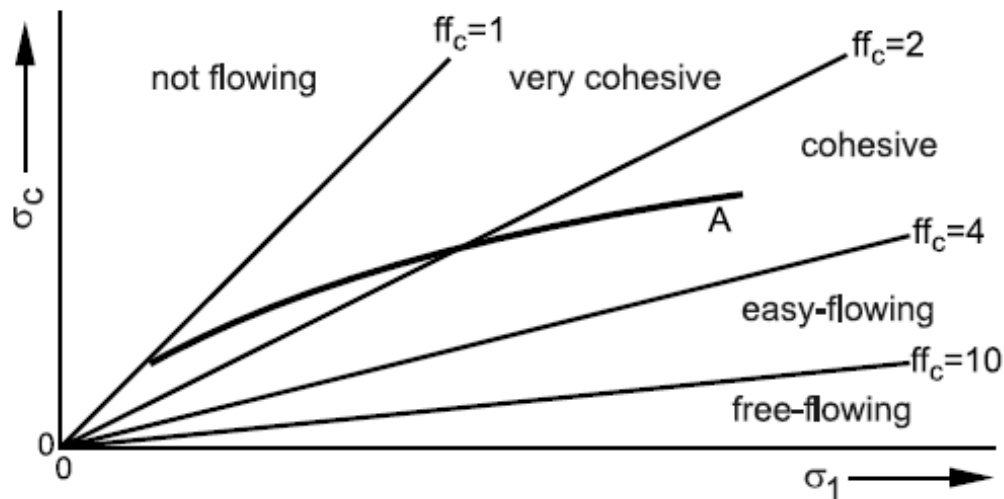


Figure 2.4 Classification des écoulements en fonction de la fonction d'écoulement ff_c . La courbe (A) représente la fonction d'écoulement de la poudre A (Dietmar Schulze et al., 2008)

Afin d'assurer un bon écoulement granulaire, il est très important de connaître l'angle d'inclinaison et l'ouverture de la trémie utilisée. En effet, si l'ouverture de trémie est plus petite que la valeur critique calculée ou bien l'angle d'inclinaison est très grand, plusieurs problématiques peuvent avoir lieu :

- ✓ Formation d'une arche stable à la sortie (formation de voûte) qui empêche l'écoulement

- ✓ Formation de cheminée stable (*rat hole*) directement au-dessus de l'orifice de sortie, elle se produit avec les poudres cohésives
- ✓ Irrégularité d'écoulement à cause des arches instables et changement de densité en vrac
- ✓ Submersion des poudres cohésives (effet avalanche) en écoulement et la formation de poussière.

2.5 Transmission des contraintes à l'intérieur de silos de poudres granulaires

L'analyse des contraintes transmises à l'intérieur de trémies, cylindriques et coniques, est basée principalement sur le modèle de Janssen, établi durant l'état statique ou dynamique du système granulaire. Dans cette section, on présente l'analyse de Janssen en détail (Figure 2.5). D'autres modèles seront présentés brièvement dans le Tableau 2.2.

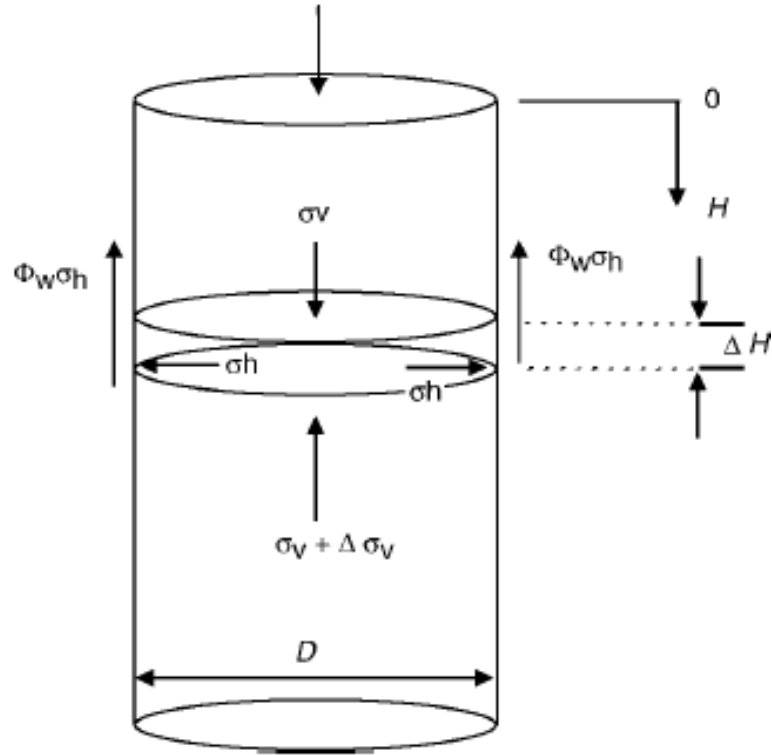


Figure 2.5 Forces exercées sur une tranche de poudre dans un silo selon Janssen (Rhodes, 2008)

Les contraintes exercées sur la base de silo ont été analysé par Janssen en considérant une tranche d'une hauteur H , les forces verticales appliquées vers le bas sont :

$$\frac{\pi D^2}{4} \sigma_v \quad (2.5)$$

Où D est le diamètre du silo et σ_v est la contrainte verticale sur une tranche de poudre. En considérant que σ_v augmente en fonction de l'épaisseur de la poudre, la réaction de la poudre envers cette contrainte est donnée par l'équation suivante:

$$\frac{\pi D^2}{4} (\sigma_v + \delta \sigma_v) \quad (2.6)$$

Donc la résultante de ces deux dernières forces est :

$$\frac{\pi D^2}{4} \delta \sigma_v \quad (2.7)$$

Si les forces normales horizontales exercées par la poudre sur les parois sont σ_h et le coefficient de friction des particules avec les parois est μ_w , les parois supportent alors une force de :

$$\pi D \delta h \mu_w \sigma_h \quad (2.8)$$

La force gravitationnelle du solide dans la tranche différentielle est :

$$\frac{\pi D^2}{4} \delta h \rho_b g \quad (2.9)$$

ρ_b est la densité apparente de la poudre et g est l'accélération.

À l'équilibre, le bilan de forces agissant sur une tranche de poudre est donné par l'équation suivante :

$$\frac{\pi D^2}{4} \delta \sigma_v + \mu_w (\sigma_h \pi D \delta h) = \frac{\pi D^2}{4} \delta h \rho_b g \quad (2.10)$$

$$\frac{d\sigma_v}{dh} + \frac{4\mu_w \sigma_h}{D} = \rho_b g \quad (2.11)$$

Contrairement aux fluides classiques, la variation de la contrainte normale exercée à la base du silo de poudres n'est pas une fonction linéaire de la hauteur du remplissage, mais plutôt une partie de cette contrainte est transmise aux parois du silo et supportée par celles-ci. Ces deux contraintes orthogonales sont liées par le coefficient de Janssen défini par k , on peut écrire donc:

$$\sigma_h = k \sigma_v \quad (2.12)$$

La valeur du coefficient de Janssen k varie en générale entre 0.3 et 0.6, il est mesuré à partir du test de compression uniaxial. Il peut être aussi calculé en fonction de l'angle de friction interne selon l'Équation (2.13). Généralement, en absence de test expérimental, une valeur de 0.4 est acceptable (Dietmar Schulze et al., 2008)

$$k = \frac{1 - \sin \delta}{1 + \sin \delta} \quad (2.13)$$

En écrivant σ_h en fonction de σ_v et en intégrant l'Équation (2.11), la contrainte normale verticale σ_v devient:

$$\sigma_v = \frac{\rho_b g D}{4\mu_w k} \left[1 - \exp \left(-4\mu_w k \frac{H}{D} \right) \right] \quad (2.14)$$

En prenant compte que σ_v à $h=0$ (la surface supérieure de la poudre) est nulle

À petite hauteur de poudre: $\sigma_v = \rho_b g H$. Alors qu'à grande valeur de H : $\sigma_v = \frac{g D \rho_b}{4\mu_w k}$ (à grande valeur de H , les exponentielles disparaissent)

Malheureusement, le modèle de Janssen, étant un modèle statique, il s'est révélé fiable seulement pendant l'écoulement dans une trémie cylindrique, car la transmission de contraintes pendant l'écoulement dans une trémie conique diffère complètement à celle de trémie cylindrique. Cependant, pendant le remplissage ou l'état statique du solide à l'intérieur d'une trémie conique, l'état de contraintes est similaire à un silo cylindrique car dans les deux cas, la contrainte horizontale (contrainte principale mineure) est inférieure à la contrainte normale (contrainte principale majeure). Cet état de contrainte est appelé état de contrainte active « *Active stress field* ».

Pendant un écoulement massique dans une trémie conique, le solide est comprimé horizontalement en raison de la forme convergente de la trémie entraînant une contrainte horizontale plus élevée par rapport à la contrainte verticale. Ainsi, le solide n'est pas comprimé dans le sens vertical comme pour l'état statique, mais comprimé horizontalement tout en se dilatant verticalement. Cet état de contrainte est appelé état de contrainte passif « *Passive stress field* »

Le Tableau 2.2 résume quelques modèles cités dans la littérature pour prédire l'état de contraintes tout le long du contenant (silos et trémie conique). Le premier a été proposé par Jenike et Walker pendant l'état statique de la poudre à l'intérieur de trémie conique. Dans ce cas, les chercheurs se sont intéressés aux contraintes appliquées sur les parois en prenant compte

l'effet de l'angle de conicité de trémie et l'angle de friction interne entre poudre et parois (Équation 2.16). Dans le cas dynamique, le modèle de Janssen reste toujours fiable pour les trémies cylindriques. Cependant, dans le cas de trémie conique le modèle est beaucoup plus complexe, et σ_v est estimée en fonction des angles de friction (interne et poudres-parois), de l'angle de trémie et l'angle entre les parois et la contrainte majeur principale selon l'Équation (2.17).

Tableau 2.2 Modèles de prédiction des contraintes verticales et de parois dans les états statique et dynamique

	Type de trémie	Modèle	Remarque
État statique	Trémie cylindrique	$\sigma_v = \frac{\rho_b g D}{4\mu_w k} \left[1 - \exp(-4\mu_w k \frac{H}{D}) \right]$ (2.15)	Janssen (1895)
	Trémie conique	$\sigma_w = \rho g \lambda \left(H + \frac{\sigma_{v0}}{\rho g} \right)$ (2.16)	Jenike (1962) : $\lambda = \frac{\tan \alpha}{\tan \varphi_w + \tan \alpha}$ Walter (1966): $\lambda = \frac{\sin(2\alpha \cos \varphi_w)}{\sin(\varphi_w + 2\alpha) + \sin \varphi_w}$
État dynamique	Trémie cylindrique	Équation (2.15)	Janssen (1895)
	Trémie conique	$\sigma_w = k_1 \left\{ \frac{\rho g H}{k_2 - 1} \left[1 - \left(\frac{h_0}{H} \right)^{k_2 - 1} \right] + \sigma_{v0} \left(\frac{h_0}{H} \right)^{k_2} \right\}$ (2.17)	Walker (1966) et Walter (1973) $k_1 = \frac{1 + \sin \delta \cos 2\psi}{1 - \sin \delta \cos(2\alpha + 2\psi)}$ $k_2 = 2(k_3 - 1)$

			$k_3 = k_1 \left(\frac{\tan \alpha + \tan \varphi_w}{\tan \alpha} \right)$ $2\psi = \varphi_w + \sin^{-1} \left(\frac{\sin \varphi_w}{\sin \delta} \right)$
--	--	--	---

Tous les modèles prédisant la distribution de contrainte verticale moyenne σ_v , et la contrainte normale de paroi σ_w mentionnés plus haut (Tableau 2.2), indiquent que la distribution de contraintes à l'intérieur de trémies à l'état statique est similaire à l'état de contraintes active. La contrainte verticale est supérieure à la contrainte normale de paroi orientée horizontalement qui est identique à la contrainte horizontale. Cependant, pendant l'écoulement massif du solide à l'intérieur de trémie conique, la distribution de contrainte est similaire à l'état de contrainte passive. Ces états de contrainte sont illustrés dans la Figure 2.6 pour une trémie cylindro-conique pendant le remplissage Figure 2.5 (a) et pendant l'écoulement Figure 2.5 (b). Les contraintes de la trémie en condition de remplissage sont similaires aux contraintes de la section verticale. L'état de contraintes est dite « *Active stress field* ». Cependant, à la zone de transition de la section verticale vers la section conique, un changement d'état de contraintes est soudainement apparu. Dans cette section, l'état de contraintes est dite « *Passive stress field* ».

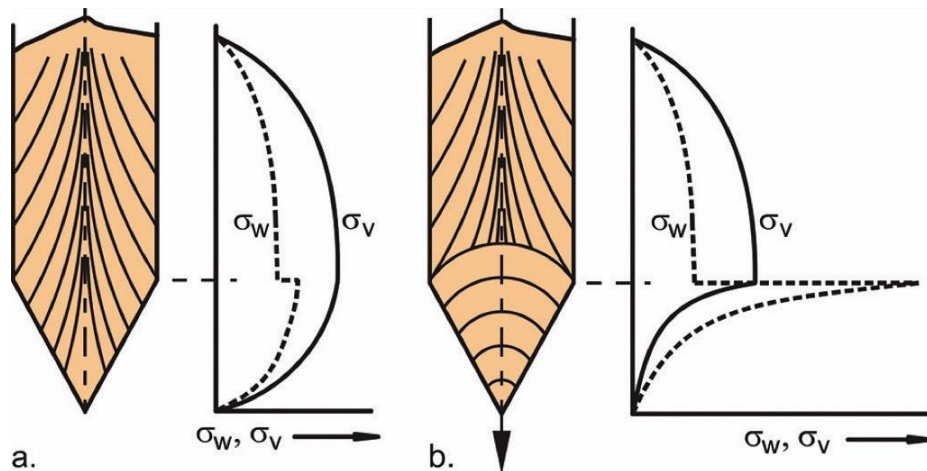


Figure 2.6 Distribution qualitative de la contrainte normale σ_v et la contrainte normale au parois σ_w en fonction de la hauteur du système granulaire. (a) représente l'état statique et (b) représente l'état dynamique (Dietmar Schulze et al., 2008)

2.6 Profil de vitesse d'écoulement gravitationnel

Tel que mentionné dans la littérature, l'écoulement granulaire est beaucoup plus complexe que celui des fluides classiques à cause de plusieurs paramètres qui entrent en jeu. En effet, le débit d'écoulement granulaire dépend d'une part, des caractéristiques de la poudre et d'autre part, de la géométrie de trémie. De nombreuses recherches scientifiques, expérimentales et théoriques se sont intéressées aux profils axial et radial de vitesse d'écoulement pendant la décharge des silos dans le but de prédire le mode d'écoulement, évitant ainsi les problèmes qui en découlent.

Théoriquement, le profil de vitesse d'écoulement granulaire à l'intérieur de silos et de trémies a été décrit dans la littérature par deux approches différentes. La première approche a été décrite par Cleaver and Nedderman dans le cas de trémies à angle incliné « *Conical, wedged-shape hoppers* » selon l'équation suivante (Cleaver & Nedderman, 1993a) :

$$\mathbf{v}_r = \frac{dr}{dt} = -\frac{f(\theta)}{r^n} \quad (2.18)$$

$f(\theta)$ est une fonction de la position angulaire θ dans un plan de coordonnées sphériques. r est la distance par rapport à l'apex en fonction de θ avec $n=2$ pour une trémie conique et $n=1$ pour une trémie en forme de coin. Le Tableau 2.3 résume de nombreux modèles décrits dans la littérature.

Tableau 2.3 Différents modèles de la fonction $f(\theta)$ rapportés dans la littérature

Source	Expression de $f(\theta)$
Brown 1961	$f(\theta) = \frac{Q \cos \theta}{2^{1/n} \rho_b \pi^{n-1} \int_0^\beta \cos \theta^{(1/2)} \sin \theta^{(n-1)} d\theta} \quad (2.19)$
Jenike1962	$f(\theta) = A e^{-(2+n) \int_0^\beta \tan 2\beta(\theta) d\theta} \quad (2.20)$ <p style="text-align: center;">A: constante</p>

Mroz 1971	$f^2(\theta) = \frac{1}{2}gr_0^5 \left\{ h[4 + \sin \delta \cos 2\beta + \sin \delta (1 + \sin 2\beta \cos 2\beta)] - \sin \theta \sin 2\beta \frac{dh}{d\theta} - \sin \delta \cos 2\beta \frac{d\beta}{d\theta} \right\}$ <p style="text-align: center;">(2.21)</p>
Generalov 1985	$f(\theta) = -\frac{A}{r^2}(1 - \sin^2\theta/\sin^2\alpha)$ <p style="text-align: right;">(2.22)</p>
Polderman 1987	$f(\theta) = A(\cos N\theta)^{\frac{3}{N}} \quad (2.23) \quad N = \frac{\omega + \varphi_w}{\alpha} \quad \text{et} \quad \omega = \sin^{-1} \left(\frac{\sin \varphi_w}{\sin \delta} \right)$

Les Équations (2.19) et (2.21) de la fonction $f(\theta)$ décrite par Brown 1961 et Mroz et Szymanski 1971, respectivement, n'ont pas été validées expérimentalement et montraient un profil d'écoulement plat qui ne correspond pas au profil expérimental étudié. Jenike a ensuite proposé une nouvelle solution plus simple, mais malheureusement, valide seulement à une petite valeur d'angle de conicité (A. Jenike, 1964). En 1985, Generalov a proposé également sa propre équation en introduisant cette fois l'effet de l'angle d'inclinaison de la trémie (Generalov, 1985). En prenant compte de l'effet de quelques propriétés rhéologiques sur l'écoulement granulaire tels que l'angle de friction interne δ et l'angle de friction particules-parois, Poldeman 1987 a proposé une autre solution analytique décrite par l'Équation (2.23) (Polderman et al., 1987; Saleh, Golshan, & Zarghami, 2018). Malheureusement, selon Nedderman 1988, tous les modèles analytiques proposés précédemment ont été rejetés expérimentalement à l'exception de celui de Jenike qui est limité seulement pour les écoulements à travers des trémies de petite conicité (Saleh et al., 2018; Schulmann, 2012).

La deuxième approche est proposée par Litwiniszyn, elle basée sur un modèle totalement stochastique appelé « *kinematic model* ». Ce dernier s'intéresse principalement aux mouvements aléatoires des particules à l'intérieur de trémies convergentes (dans le cas de trémies cylindriques, l'écoulement possède un profil plat). Dans ce cas les particules supérieures

se déplacent latéralement d'une façon aléatoire vers les espaces laissés par les particules tombant vers la couche inférieure. Mullins avait aussi proposé un autre modèle similaire, appelé « void model », basé cette fois sur la taille du vide laissé par les particules du même ordre de grandeur. Ce comportement aléatoire est exprimé par Litwiniszyn et Mullin par l'équation différentielle (2.24) d'où la composante horizontale de la vitesse d'écoulement est une fonction du gradient de vitesse d'écoulement (ex. taux de cisaillement), x et z sont la distance horizontale et verticale respectivement.

$$v_x = b \frac{\partial v_z}{\partial x} \quad (2.24)$$

$$\frac{\partial v}{\partial z} = b \frac{\partial^2 v}{\partial x^2} \quad (2.25)$$

Reliant l'équation précédente à la condition d'incompressibilité, Nedderman et Tuzan (1979) ont réussi à obtenir une solution analytique pour l'équation différentielle précédente afin de prédire le profil d'écoulement granulaire en fonction de la position radiale dans le cas de trémie « *2D-flat bottom* » selon l'Équation (2.26) :

$$V(x, z) = \frac{Q}{\sqrt{4\pi bz}} e^{\frac{x^2}{4bz}} = v_0 e^{\frac{x^2}{4bz}} \quad (2.26)$$

D'où : Q est le débit volumétrique, le coefficient « b » a été largement discuté par plusieurs chercheurs en fonction du type et du diamètre des particules (2.24 d_p pour tout type de particules, 2 d_p pour les particules de minerai de fer et 3.5 d_p pour les billes de verre). La valeur de ce dernier n'est jamais constante, c'est pour cette raison que l'utilisation de ce modèle cinématique reste limité dans le domaine de géométries étudiées (Choi et al., 2005; Medina et al., 1998; Mullins, 1974; Nedderman & Tüzün, 1979; Samadani et al., 1999; Tüzün & Nedderman, 1979).

Expérimentalement, la prédiction du profil de vitesse d'écoulement à l'intérieur des silos et de trémies est basée principalement sur le suivi du chemin d'un traceur le long de son passage à travers un lit granulaire. Ce traceur doit avoir plus au moins les mêmes caractéristiques du système granulaire étudié afin de suivre le plus possible le même comportement de ce dernier.

Cependant, il doit avoir une nature différente pour faciliter sa détection par certaines technologies appropriées telle que : la méthode photographique (Albaraki & Antony, 2014; Bridgwater, 2012; Maiti et al., 2016), spectroscopie infrarouge (Castellanos Gil et al., 2012; Sarraguça et al., 2010) ainsi que les rayons X et γ (Knodel et al., 1991). Les traceurs peuvent également être des particules colorées, radio-isotopiques ou magnétiques (Artoni et al., 2011; Gupta et al., 2012; I. Sielamowicz et al., 2005).

En plus de toutes ces méthodes théoriques et expérimentales mentionnées dans les paragraphes précédents, il existe d'autres méthodes, dites méthodes de simulation numérique. La méthode '*Discrete Element Method*' DEM est la plus utilisée. (Anand, Curtis, Wassgren, Hancock, & Ketterhagen, 2009; Artoni et al., 2011; Faqih, Chaudhuri, Mehrotra, Tomassone, & Muzzio, 2010; Ketterhagen et al., 2009; Tian et al., 2018; Xiao et al., 2019). Cependant, l'inconvénient majeur de ces méthodes de simulation est que la prédiction de l'état dynamique dans les silos n'est pas réaliste à cause de la limitation du nombre de particules. (Wang & Ooi, 2015; Zheng, Xia, Pan, & Yu, 2017).

2.7 Distribution du temps de résidence

Malgré l'importance de l'information que la distribution du temps de résidence (RTD), très peu d'études, expérimentales ou théoriques utilisent cette notion pour analyser les écoulements granulaires dans des silos.

Mullins a étudié la distribution du temps de résidence à l'intérieur du silo vertical, en se basant sur le modèle cinématique, présenté précédemment. Quant à Cleaver & Nedderman, 1993b, leur approche est basée sur l'équation du profil de vitesse d'écoulement à l'intérieur de trémies coniques (Équation 2.21). La solution analytique de ces modèles reste liée au coefficient b et à la fonction $f(\theta)$ respectivement. Récemment (Abatzoglou, Castellanos Gil, & Gosselin, 2014; Castellanos Gil et al., 2012) ont approuvé l'utilisation de la distribution de temps de résidence pour étudier le profil d'écoulement gravitationnel à l'intérieur de trémies de différentes géométries. Les chercheurs se sont basés sur le modèle largement utilisé en génie des réacteurs, donné par l'Équation (2.27). En général, le temps de résidence est défini comme le temps que

les particules prennent pour quitter un silo en traversant un volume d'un lit granulaire (Castellanos Gil et al., 2012).

$$t_m = \int_0^{\infty} t E(t) dt \quad (2.26)$$

$E(t)$ est appelé la fonction de distribution du temps de résidence. C'est la fonction qui décrit de manière quantitative combien de temps a pris le mélange granulaire dans le silo.

$$E(t) = \frac{c(t)}{\int_0^{\infty} c(t) dt} \quad (2.27)$$

$C(t)$ est la concentration d'un constituant granulaire. La méthode utilisée est inspirée par la méthode d'injection impulsion « Pulse input » largement utilisée dans le cas des fluides classiques: Une quantité du traceur est rapidement injectée en une seule fois dans le courant d'alimentation entrant dans un réacteur chimique. La concentration de ce traceur est mesurée à la sortie en fonction du temps. En général, pour les systèmes granulaires, la méthodologie est basée sur le suivi du chemin d'une poudre introduite dans un lit granulaire. En cours de l'écoulement, la concentration de ce traceur est mesurée en sortie en fonction du temps selon la courbe présentée par la Figure (2.7)

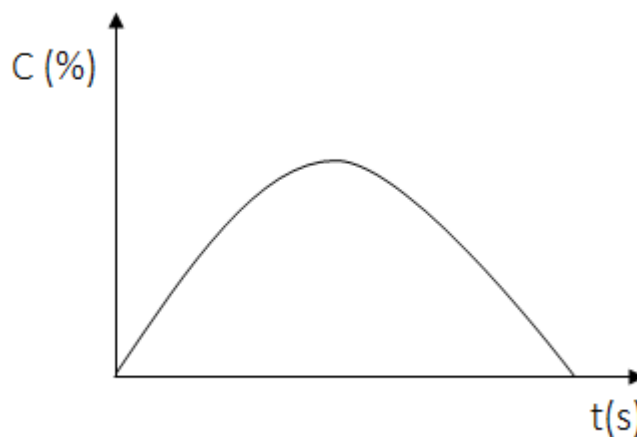


Figure 2.7 Courbe de concentration du traceur en fonction du temps

L'intégrale de la fonction $E(t)$ entre un intervalle du temps t_1 et t_2 représente la fraction du matériel qui quitte le réacteur après avoir passé du temps entre t_1 et t_2 . La fraction de tout le matériel avoir résidé dans le silo entre $t = 0$ et $t = \infty$ est égale à 1:

$$\int_0^{\infty} E(t) dt = 1 \quad (2.29)$$

Dans ce cas, la vitesse moyenne d'écoulement granulaire peut être prédite à partir du temps de résidence et la distance axiale que le matériau granulaire a traversé :

$$U = \frac{H}{t_m} \quad (2.30)$$

2.8 Problématiques liées à l'écoulement granulaire

Dans le domaine pharmaceutique, le phénomène indésirable largement rencontré pendant la fabrication des formes sèches est la ségrégation particulaire.

2.8.1 Définition, causes et conséquences

La ségrégation, également appelée dé-mélange, est un processus inverse du mélange, caractérisé par une séparation partielle ou totale d'un mélange de poudres initialement homogène (Niklas Engblom, Saxén, Zevenhoven, Nylander, & Enstad, 2012). La tendance à la ségrégation des systèmes particuliers a lieu quand des différences de propriétés physiques telles que la taille, la forme et la densité entre les particules imposent un mouvement préférentiel de certaines d'entre elles. Les poudres non-cohésives (à écoulement libre) sont les plus ségrégatives; quant aux poudres cohésives, leurs forces interparticulaires réduisent la mobilité individuelle des particules, ce qui favorise, par contre, leur tendance à l'agglomération (Rhodes, 2013).

Plusieurs études scientifiques ont démontré que les principaux facteurs menant au phénomène de ségrégation de mélanges granulaires sont présentés en ordre prépondérant comme suit :

- La différence de taille des particules (Arteaga & Tüzün, 1990; Ketterhagen, Curtis, Wassgren, & Hancock, 2008; Ketterhagen et al., 2009, 2007a; Liu, LaMarche, Kellogg,

& Hrenya, 2016; Samadani et al., 1999; Seil, Gómez, Pirker, & Kloss, 2012; Shinohara, Shoji, & Tanaka, 1970)

- La différence de densité des particules (Artega & Tüzün, 1990; Niklas Engblom et al., 2012; Seil et al., 2012; Shinohara & Golman, 2003a)
- La composition du mélange (Artega & Tüzün, 1990; Rahman, Shinohara, Zhu, Yu, & Zulli, 2011; Samadani et al., 1999; Shinohara & Golman, 2003b; Shinohara, Golman, & Nakata, 2001)
- La forme des particules (Tao, Zhong, Jin, & Ren, 2013; Yu & Saxén, 2014)
- La rugosité de surface et la résilience des particules (Windows-Yule & Parker, 2015), la friction des particules (Tao et al., 2010; Tao, Zhong, & Jin, 2014) et l'humidité (Anand et al., 2009; Bagster, 1996)
- La rugosité de surface et la géométrie du transport (N. Engblom, Saxén, Zevenhoven, Nylander, & Enstad, 2012b, 2012a; Ketterhagen et al., 2007b; Shinohara & Golman, 2003a);

L'impact de taille des particules sur le phénomène de ségrégation est le plus important par rapport aux autres facteurs mentionnés précédemment. En général, le phénomène de ségrégation se produit dans le cas des mélanges granulaires à écoulement libre, de taille moyenne supérieure à 100 μm . Plus le ratio de taille augmente, plus le mélange a tendance à la ségrégation (Samadani et al., 1999; Shinohara et al., 2001).

Les problèmes découlant du phénomène de ségrégation ont des conséquences importantes sur l'apparence de la matière, la texture et le comportement d'écoulement, ce qui peut entraîner des difficultés de production et ainsi des risques de sécurité. Dans le domaine pharmaceutique, la ségrégation est l'un des problèmes communs associés à des formulations à faible dose du principe actif, en particulier pour celles qui sont fabriquées par un procédé de compression directe. Cela peut entraîner une variation de dose du principe actif dans un comprimé à l'autre, ce qui ne répond pas aux critères d'uniformité fixées par la pharmacopée. Donc, dans ce cas, l'industrie pharmaceutique doit rejeter le lot affecté, résultant alors de lourdes pertes financières (Deng et al., 2010; He, Han, Ladyzhynsky, & Deanne, 2013)

2.8.2 Mécanisme de ségrégation particulaire

Selon les facteurs influençant la ségrégation particulaire, treize mécanismes de celle-ci sont connus dans la littérature par : trajectoires 'inertie', percolation des fines particules, élutriation, effet de tamis « *sieving* », roulement des particules, déplacement (vibration), fluidisation, agglomération, effet de répulsion « *push-away* », impact, effet d'enchâssement « *embedding* », angle de repos et le déplacement régit par la concentration « *concentration-driven displacement* ». Les mécanismes les plus connus dans le domaine pharmaceutique sont en fonction de la différence de taille des particules. Carson et Johanson ont défini trois principaux mécanismes (Dietmar Schulze et al., 2008) :

Ségrégation due aux trajectoires des particules

En écoulement libre, les particules de différente taille constituant un système granulaire s'écoulent à différentes vitesses; les grosses particules vont plus loin dans le bac de stockage que les plus fines.

Ségrégation par percolation

Lors de toute manipulation des particules de différentes tailles (vibration, agitation...), des interstices interparticulaires peuvent apparaître, ce qui favorise l'écoulement des fines particules à travers les grosses particules. Dans le cas de vibration, et lorsque la fraction volumique de fines particules est importante, la ségrégation est dite flottaison.

Ségrégation par élutriation

Lorsqu'un mélange granulaire contient une grande gamme de taille moins de 50 μm se trouve dans un réservoir de stockage ou une trémie, l'air sera déplacé vers le haut en réduisant la vitesse des petites particules de façon plus significative que pour les grosses particules, ce qui favorise une ségrégation particulaire par taille.

Chapitre 3 APPROCHE PROPOSÉE ET MÉTHODOLOGIE

3.1 Approche proposée

La prédiction du profil radial de l'écoulement granulaire reste un enjeu difficile jusqu'à nos jours à cause de la complexité du comportement des systèmes granulaires. Au fait, les modèles théoriques mentionnés dans la littérature (chapitre 2) ont été rapidement abandonnés après avoir été testés par d'autres chercheurs pour adapter leurs résultats expérimentaux avec ces modèles qui prédisent des profils trop plats par rapport aux données expérimentales (Saleh et al., 2018).

Tel que mentionné dans l'introduction, le présent travail porte sur le développement de nouvelles approches permettant de (1) prédire le profil radial de la vitesse d'écoulement granulaire dans une trémie symétrique conique en fonction des propriétés de friction et (2) prédire les profils axial et radial de la contrainte normale « σ_v » en fonction de la vitesse d'écoulement prédit dans (1).

Pour atteindre le premier objectif, l'approche proposée est inspirée de l'équation du profil d'écoulement radial utilisée pour les fluides classiques en introduisant dans ce cas l'effet des propriétés frictionnelles des systèmes granulaires. L'hypothèse du modèle proposé repose sur le fait que les forces dues à l'interaction entre les particules et la paroi s'estompent lorsque les particules s'éloignent de la paroi, tandis que celles entre les particules s'intensifient. Par conséquent, nous supposons que lorsque r est nul (Axe central de la trémie symétrique), l'effet de l'angle de friction interne devient plus important que l'angle de friction de la paroi.

L'approche proposée pour atteindre le deuxième objectif est une extension de l'analyse de *Janssen*. Elle est basée sur le bilan de force pendant l'écoulement gravitationnel à l'intérieur d'une trémie conique. Le développement a été complété par l'équation de la deuxième loi de *Newton* sur le principe fondamental de la dynamique.

Comme toute nouvelle équation phénoménologique, les modèles semi-empiriques proposés dans ce travail doivent toutefois être validés expérimentalement en mettant en place un plan expérimental approprié.

3.2 Plan expérimental

La méthodologie expérimentale adoptée dans ce travail a été inspirée par la méthode d'injection impulsion en fonction de la distribution du temps de résidence moyen. La méthode consiste à introduire une poudre discrète appelée 'poudre pulsée' à l'intérieur d'un lit d'une poudre différente. Ensuite, mesurer sa concentration à la sortie de la trémie pendant l'écoulement gravitationnel en utilisant la spectroscopie NIR (La méthode est expliquée en détail dans le chapitre 2).

Le montage expérimental de ce travail a été conçu en laboratoire en utilisant un nouveau système d'échantillonnage non-invasif de type guillotine pour collecter le mélange granulaire à la sortie de la trémie. La figure (3.1) illustre l'ensemble de l'équipement composé de :

1. Trémie conique en acier inoxydable 316 de dimensions connues.
2. Guillotine en acier inoxydable. Le temps d'ouverture a été fixé à $110 \pm 0,2$ ms dans le but de minimiser les perturbations radiales provoquées par le contact entre la poudre et la surface de la guillotine. La méthode d'optimisation de ce système a été détaillée dans des travaux antérieurs menés par notre équipe de recherche (Castellanos Gil et al., 2012).
3. Cylindre en acier inoxydable à deux entrées d'air (6498K162, McMaster - Carr) afin de pousser la guillotine dans les deux sens « *push-pull* », muni à deux électrovannes (6124K513, McMaster - Carr) afin de contrôler la pression d'air pour créer un profil de vitesse désiré de la guillotine.
4. Sonde NIR Axsun (Axsun Technologies, Billerica, MA, USA).

5. Accessoire de réflectance diffuse offre une plage de longueur d'onde entre 1350-1800 nm (de 2 nm de résolution); 16 balayages - moyennes diffuses optique de projection de réflexion (9 mm de diamètre effectif).
6. Moteur de déplacement de la sonde NIR contrôlé par le programme LabView 2009 (National instruments, Debrecen, Hungary).



Figure 3.1 Équipement trémie-guillotine-sonde NIR

Après chaque mouvement de guillotine, la sonde NIR a été programmée pour se déplacer en dessous du collecteur pour collecter des spectres en 61 points répartis sur la surface du collecteur afin de couvrir un maximum de surface. Le choix de ces points est justifié plus de détails à l'annexe A.

La validation et la quantification de la méthodologie a été réalisée par : (1) peser la quantité collectée après chaque mouvement de la guillotine durant l'écoulement, ensuite (2) mélanger pour homogénéiser et (3) retourner le mélange dans le même collecteur et insérer dans la sortie

de la trémie (guillotine fermée). Et enfin (4) quantifier la composition du mélange homogène par la sonde NIR dans les 61 points préalablement définis. Le calcul est donné à l'annexe B.

La concentration de la poudre pulsée à la sortie de la trémie est calculée en fonction de la courbe d'étalonnage préalablement préparée à partir des mélanges binaires standards (poudre 'A'/poudre 'B') de 0, 20, 40, 60, 80 et 100 (w / w). Chacun de ces standards a été déposé dans le collecteur et fixé à la sortie de la trémie pour être analysé par NIRS.

Le protocole expérimental adopté a été défini comme suit. Trois couches de poudres à écoulement libre ont été introduites à l'intérieur de la trémie :

- (1) Un lit continu de 150 mm d'une poudre 'A'.
- (2) Une couche de 10 mm de la poudre pulsée, poudre 'B' placée au-dessus de la poudre 'A'.
- (3) La même poudre 'A' est placée au-dessus de la deuxième couche dans le but d'éviter l'effet de la surface libre qui perturbe le profil d'écoulement. Sa quantité optimale est prédéfinie dans l'article (1).

La quantité de poudre pulsée n'affecte pas le profil d'écoulement du système granulaire étudié. Cependant, une quantité suffisante de la première couche est nécessaire pour assurer une bonne distribution de la poudre pulsée jusqu'à sa sortie de la trémie.

Afin d'assurer un bon écoulement et ainsi éviter les problèmes de la formation de voûte, les poudres à écoulement libre sont privilégiées dans ce travail.

Le ratio de taille des systèmes granulaire binaires (poudre pulsée/ lit de poudre) a été choisi afin de faciliter la distribution de la poudre pulsée à l'intérieur de la deuxième couche sans perturber le comportement d'écoulement et éviter la ségrégation par percolation.

Étant donné que l'humidité résiduelle peu affecter l'écoulement des systèmes granulaires, il a été décidé de la maintenir constante tout au long du test d'écoulement pour minimiser toute variabilité spectrale. Sa valeur optimale a été fixée dans l'article (1).

Un rhéomètre FT4 a été utilisé pour mesurer les angles de friction interne et particules-parois mentionnés dans les modèles proposés. Pour cela, deux tests rhéologiques ont été réalisés: un

test de cisaillement pour obtenir l'angle de friction interne et un test de friction avec les parois pour obtenir l'angle de friction particules-parois.

Le protocole expérimental adopté dans ce travail permet seulement la prédiction du profil d'écoulement en fonction de la position radiale sur le diamètre de la sortie de trémie. Il est donc incapable de prédire le profil axial en fonction de la profondeur de la poudre à l'intérieur de la trémie.

Chapitre 4 PREDICTION DU PROFIL RADIAL DE LA VÉLOCITÉ D'ÉCOULEMENT GRANULAIRE

4.1 Avant-propos

Auteurs et affiliation :

Oumaima Chaib : Étudiante au doctorat, Université de Sherbrooke, Faculté de génie, Département de génie chimique et de génie biotechnologique, 2500 Boulevard de l'Université de Sherbrooke Québec J1K 2R1, Canada

Ines Esma Achouri : Professeure, PhD, Université de Sherbrooke, Faculté de génie, Département de génie chimique et de génie biotechnologique, 2500 Boulevard de l'Université de Sherbrooke Québec J1K 2R1, Canada

Ryan Gosselin : Professeur, PhD, Université de Sherbrooke, Faculté de génie, Département de génie chimique et de génie biotechnologique, 2500 Boulevard de l'Université de Sherbrooke Québec J1K 2R1, Canada

Nicolas Abatzoglou: Professeur, PhD, Université de Sherbrooke, Faculté de génie, Département de génie chimique et de génie biotechnologique, 2500 Boulevard de l'Université de Sherbrooke Québec J1K 2R1, Canada. Titulaire de la Chaire Pfizer sur les technologies d'analyse de procédés en génie pharmaceutique.

Date de soumission : 24 juillet 2020

État d'acceptation : accepté pour publication dans le journal scientifique 'The Canadian Journal of Chemical Engineering'

Contribution au document :

Ce premier article répond au premier objectif de ce doctorat, qui est le développement d'un modèle mathématique prédisant le profil radial de la vitesse d'écoulement gravitationnel des systèmes granulaires à l'intérieur de trémie conique.

Titre en français :

Écoulement gravitationnel massique de poudre à travers des trémies coniques Partie I: Modèle mathématique prédisant le profil de vitesse radiale des systèmes granulaires à écoulement libre en fonction des propriétés de cohésion et d'adhésion.

Résumé en français :

Il a été démontré que la concentration, les profils de vitesse et la distribution du temps de résidence (RTD) d'un mélange granulaire binaire s'écoulant dans des conditions de gravité peuvent être évalués par spectroscopie proche infrarouge (NIRS). Contrairement au profil d'écoulement de fluides classiques, le profil d'écoulement granulaire dépend fortement des propriétés de cohésion et d'adhésion du système granulaire. Le présent travail visait à développer une équation semi-empirique inspirée de l'équation du profil radial d'écoulement des fluides classiques. Il y parvient en introduisant l'effet des propriétés de frottement du système granulaire sous forme d'angles de frottement internes (particules-particules) et externes (particules-parois). L'équation développée démontre un bon accord avec les résultats expérimentaux utilisant divers angles de trémie et deux types de systèmes granulaires à écoulement libre. Les connaissances acquises à partir de l'équation développée visent à prédire le comportement d'écoulement dans des trémies coniques symétriques en fonction des paramètres d'adhésion et de cohésion du système granulaire en écoulement. La combinaison de ces connaissances avec la distribution du temps de résidence et les profils radiaux de concentration permettrait d'évaluer la tendance d'un mélange granulaire à la ségrégation.

Mots clés : Profil d'écoulement granulaire, trémies coniques, propriétés de frottement, spectroscopie proche infrarouge, temps de séjour.

4.2 Gravity mass powder flow through conical hoppers Part I: A mathematical model predicting the radial velocity profiles of free-flowing granular systems as a function of cohesion and adhesion properties

Oumaima Chaib, Ines Esma Achouri, Ryan Gosselin, Nicolas Abatzoglou*

Université de Sherbrooke, Department of Chemical & Biotechnological Engineering

Pfizer Industrial Research Chair on PAT in Pharmaceutical Engineering

Sherbrooke, Québec, CANADA

(*) Corresponding author: Nicolas.Abatzoglou@USherbrooke.ca

4.2.1 Abstract

It has been demonstrated that the concentration, velocity profiles, and residence time distribution (RTD) of a binary powder mixture flowing under gravity-driven conditions can be evaluated via near-infrared spectroscopy (NIRS). Contrary to a classical fluid flow profile, a granular flow profile was proven to be a function of cohesion and adhesion powder mixture properties. The present work aimed to develop a semi-empirical equation inspired by the radial flow profile equation used for classical fluids. It achieves this by introducing the effect of powder friction properties as internal (particle-particle) and external (particle-hopper wall) friction angles. The developed equation shows good agreement with the experimental results using various hopper angles and two types of free-flowing granular systems. The knowledge gained from the developed equation is intended to predict flow behavior in conical hoppers as a function of flowing powder adhesion and cohesion parameters. Combining such knowledge with residence time distribution and the radial concentration profiles would make it possible to evaluate the expected extent of segregation, which could lead to prohibitive deviations in the production of pharmaceutical solid dosage forms.

Keywords: Powder flow profile, Conical hoppers, Friction properties, Near infra-red spectroscopy, Residence time.

4.2.2 Introduction

Granular systems are commonly used in the pharmaceutical industry. Notably, the behavior of these systems is complex and dependent on the properties of their component powders (e.g. shape, size, and friction properties) as well as the geometry and physical characteristics of the processing equipment (e.g. shape, hopper outlet size and wall roughness) (Fu et al., 2012). In the case of a granular gravity flow through a given container (i.e. hopper or bin), the flow pattern may be categorized as one of two regimes: “mass flow” or “funnel flow”. The mass flow regime is described as first-in-first-out when each particle is in parallel motion and flows in an orderly manner inside the hopper, which is analogous to the laminar flow of classical fluids. For the funnel flow regime, described as first-in-not-necessarily-first-out, the flow is rather random and analogous to the turbulent flow of classical fluids. In this case, powders flow mainly in the center of the hopper, allowing the formation of stagnant zones adjacent to the hopper walls, this yields heterogeneity at the outlet flow composition and rather extended segregation phenomena.

The measurement of powder flow properties is important to preventing this problem because it would facilitate the prediction and quantification of segregation tendencies, which would result in powder homogeneity at the desired scrutiny level (Rhodes, 2008; Dietmar Schulze et al., 2008). Several works have studied flow types as a function of powder and hopper properties, such as particle size (Arteaga & Tüzün, 1990; Shinohara et al., 1970), hopper geometry, and material friction properties (Ketterhagen et al., 2009; I. Sielamowicz et al., 2005). Jenike developed a semi-empirical chart to classify flow patterns as a function of conical hopper properties. Figure 3.1 illustrates that, for a given internal friction angle (δ), the powder flow regime can be estimated if the hopper wall angle and wall friction angle are known. This chart was obtained by the combination of the illustrated parameters, which led to the solution of a differential equation system developed by Jenike. The model was also experimentally validated (A. W. Jenike, 1967; Ketterhagen et al., 2009; Dietmar Schulze et al., 2008).

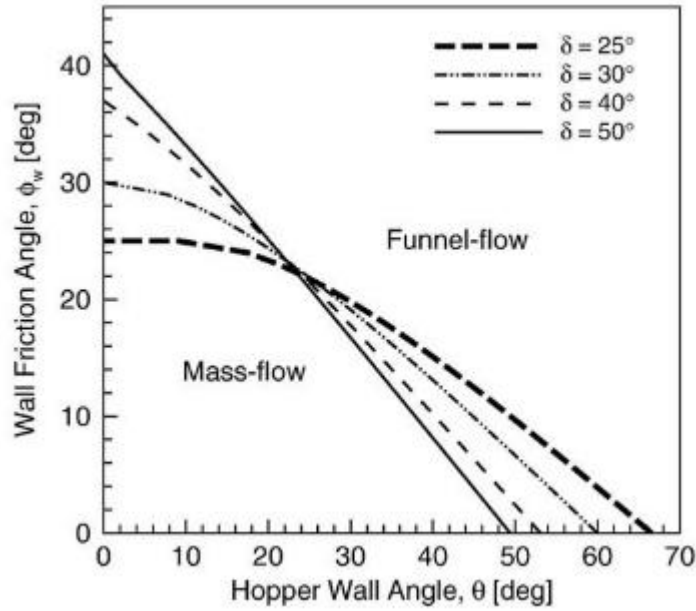


Figure 4.1 Jenike chart design for a conical hopper (Ketterhagen, Curtis, Wassgren, & Hancock, 2009)

Another quantitative method is the mass flow index (MFI), which is used to characterize flow patterns as a function of the velocity distribution through a conical hopper. MFI is given by the ratio of the mean particle velocity at the hopper wall U_{wall} to the mean particle velocity at the hopper centerline $U_{centerline}$ (Equation 4.1).

$$MFI = U_{wall} / U_{centerline} \quad (4.1)$$

An $MFI > 0.3$ indicates a mass flow behavior, whereas an $MFI < 0.3$ indicates a funnel flow regime (A. W. Jenike, 1964a; Johanson, 1964; Ketterhagen et al., 2009).

Notably, several analytical and numerical studies have been conducted to examine the discharge of granular systems from hoppers (Al-Din & Gunn, 1984; Saleh et al., 2018; Williams, 1977). The basis of these studies has focused on the mass flow rate (W) measured by Beverloo (1961) using Equation (4.2).

$$W = C \rho_{bulk} \sqrt{g D_h^5}, \text{ with } D_h = D_0 - 1.4 d_p \quad (4.2)$$

where the mass flow rate (W) is presented as a function of the material's bulk density ρ_{bulk} , the acceleration of gravity (g), the nominal diameter of the outlet of hopper D_h , and the coefficient $C = 0.58$ (Humby, Tüzün, & Yu, 1998). Unfortunately, according to several researchers, the coefficient C fixed by Beverloo is not constant and sensitive to the properties of powders and hoppers. This is expressed by Schaeffer (1987) and Nedderman (1992) as a function of both the internal angle friction δ and the angle of hopper outlet α , according to Equation (4.3).

$$W = \frac{\pi}{4} \sqrt{\frac{1}{(5 \sin \delta - 1) \sin \alpha}} \rho_{bulk} \sqrt{g D_h^5} \quad (4.3)$$

Shrivastava and Sundaresan (2003) proposed $C = 1.6$ after introducing the effect of powder compressibility (Gentzler & Tardos, 2009; Srivastava & Sundaresan, 2003). However, due to a large number of assumptions, these theoretical models are limited to the same experimental conditions.

There are two theoretical approaches to predict velocity flow profiles. The first is based on a completely stochastic model, proposed by (Litwiniszyn, 1961) as the "kinematic model". This model is primarily interested in the random motion of particles inside convergent hoppers (the flow profile is flat for cylindrical hoppers). Unfortunately, the analytical solution of this model contains an unknown coefficient, and its value has been largely discussed as a function of the type and size of particles (Choi et al., 2005; Medina et al., 1998; Mullins, 1974; Nedderman & Tüzün, 1979; Samadani et al., 1999; Tüzün & Nedderman, 1979). The second approach was described by Cleaver and Nedderman for inclined angle hoppers (i.e. Conical and wedge-shaped hoppers). The model is based on the angular position in a plane of spherical coordinates. Unfortunately the majority of the analytical solutions proposed for this model were experimentally non-reproducible (Cleaver & Nedderman, 1993b; Generalov, 1985; Polderman

et al., 1987). The experimental prediction of flow velocity profiles inside silos and hoppers is primarily based on tracking a tracer path along its passage through a granular bed. This tracer must have more or less the same characteristics as the studied granular system in order to mirror its behavior while being detectable using appropriate monitoring technologies such as the photographic method) (Albaraki & Antony, 2014; Bridgwater, 2012; Maiti et al., 2016), infrared spectroscopy (Abatzoglou et al., 2014; Castellanos Gil et al., 2012; Sarraguça et al., 2010) as well as x- and γ -rays (Knodel et al., 1991). Tracers may also be colored, radioisotope, or magnetic particles (Artoni et al., 2011; Gupta et al., 2012; I. Sielamowicz et al., 2005; Irena Sielamowicz et al., 2006). In recent years, near-infrared spectroscopy (NIRS) has proven to be one of the principal analytical techniques used in the pharmaceutical industry due to it being safe, rapid, non-destructive, and inexpensive (Benedetti et al., 2007; Castellanos Gil et al., 2012; Ely, Chamarchy, & Carvajal, 2006). Notably, Benedetti proposed a new in-line methodology based on NIRS instead of inserting an invasive thief probe to avoid local segregation (Benedetti et al., 2007). In this work, the probe was fixed on a sapphire window positioned at the wall of an asymmetrical conical hopper typically used in pharmaceutical production equipment (feeding a tablet press). This arrangement allows the quantification of the composition within a thin layer (typically 1 mm) adjacent to the wall; consequently, the radial distribution of the powders cannot be detected due to the limitations of NIR light penetration within powders. To avoid this problem, the position was changed to the exit of the hopper to allow the evaluation of radial flow profiles (Castellanos Gil et al., 2012).

The focus of the present work is to develop a methodology to predict gravitational flow velocities (radial and axial) in free-flowing granular systems as a function of powder and hopper properties. This work includes the following:

- (i) Theoretical development of a semi-empirical equation to predict the radial velocity flow profile as a function of friction characteristics.
- (ii) Experimental prediction of velocity profiles using NIR technology.
- (iii) Comparison of the experimental radial velocity profiles and the theoretical model obtained from the equation developed in (i).

4.2.3 Theoretical development

The development of a semi-empirical equation to predict granular velocity flow profiles is inspired by the flow velocity profile equation used for classical fluids in a tubular pipe (Equation 4.4). This equation indicates that radial velocity profile is parabolic, with a maximal value at the center and zero at the walls.

$$U(r) = U_{max} \left[1 - (r/R)^\zeta \right] \quad (4.4)$$

In classical fluids, interactions within the flowing mass are molecular. Moreover, at the Å or nano level, the influence of molecule movement some microns away is statistically insignificant. In flowing powders composed of particles whose size is typically to the order of 0.1 mm, the impact of forces exerted on each particle influences nearby particles, and so on. The proposed model assumption relies on the hypothesis that forces due to the interaction between particles and the wall fade out as particles move away from the wall, while those between particles are intensified. Consequently, we assume that when r is zero (centerline), the effect of the internal friction angle is more important than the wall friction angle, and vice versa. To express this mathematically, we propose the following formulation, which is an extension of the classical fluids, laminar flow velocity equation.

Thus,

$$\text{If } r=0: \sin \delta^{(1-r/R)} = \sin \delta \text{ and } \sin \phi_w^{(r/R)} = 1$$

$$\text{If } r=R: \sin \delta^{(1-r/R)} = 1 \text{ and } \sin \phi_w^{(r/R)} = \sin \phi_w$$

By introducing these properties, Equation (4.4) becomes:

$$U(r) = U_{max} \left[1 - (\sin \delta)^{(1-r/R)} \times (\sin \phi_w)^{(r/R)} \times \left(\frac{r}{R} \right)^\zeta \right] \quad (4.5)$$

As mentioned in the literature, the parabolic profile for granular systems is mainly related to the conicity of the hopper (for symmetric-cylindrical hoppers, the profile is flat) (Albaraki & Antony, 2014; Faqih et al., 2010). This is why another parameter ω was introduced in the equation to express the effect of this property on the profile. In this case, the velocity $U(r)$ becomes not only dependent on the friction angles but also on the hopper angle, which is expressed by ω . The smaller the ω values, the closer the flow is to plug flow behavior.

Based on the aforementioned assumptions, a new equation (Equation 4.6) has been developed to predict the flow velocity profile for granular systems:

$$U(r) = U_{max} \left[1 - (\sin\delta)^{(1-r/R)} \times \omega \times (\sin\phi_w)^{(r/R)} \times \left(\frac{r}{R}\right)^\zeta \right] \quad (4.6)$$

Figure 4.2 depicts a typical $U(r)$ profile.

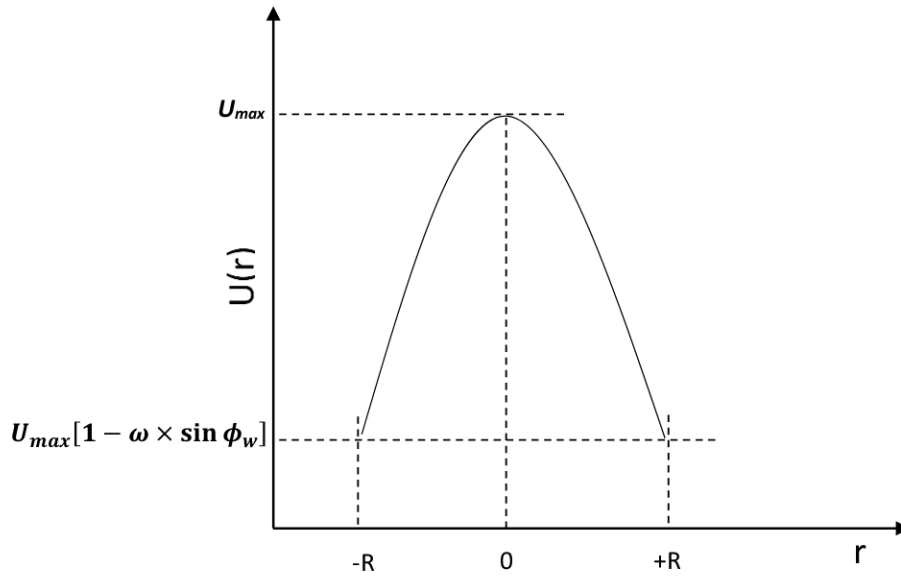


Figure 4.2 Graphical presentation of the Equation (4.6)

4.2.4 Materials and Methods

The proposed model was tested on different pharmaceutical powders during their gravitational flow inside hoppers at various hopper angles. A detailed description of the materials and methods used is presented in this section.

Materials

Three common pharmaceutical excipients for oral solid dosage forms were used in this experimental study: Lactose 316 N.F. Fast Flo (Foremost Farms, Rothschild, Wisconsin, USA), dicalcium phosphate, dihydrate DCP (DI-TAB, Innophos, Inc., USA), and calcium carbonate CaCO_3 (Destab, 90S, ultra 250, USA). These excipients were sieved through a brass pan sieves (10 cm diameter, ASTM E-11 standard test sieve, Gilson Company, Lewis Center, Ohio, USA) to obtain different particle size ranges of Lactose (75-125 μm), DCP (180-250 μm) and CaCO_3 (180-250 μm). All these excipients were chosen for their good flowability.

Equipment

The experimental setup (illustrated in Figure 4.3) consists of an in-house apparatus composed of a lab scale bin or a hopper (SS 316, two wall roughness values were used: $R_a = 0.28\text{--}0.81\mu\text{m}$ and $R_a = 1.2\mu\text{m}$, cylindrical bin, 6, 16 and 25° conical angles, 47mm outlet radius) equipped with an automatically controlled gate-valve system guillotine placed at the outlet of the hopper that allows powder flow control by sampling at different time intervals. Sampling was conducted by thin cylindrical powder slices being collected in a plexiglass collector. In previous work, the guillotine system (i.e. the geometry and speed of the guillotine) was optimized and validated to prevent local segregation problems during the flow slicing process (Castellanos Gil et al., 2012).

For quantitative powder analysis, an Axsun OH-CH NIRS probe (with a lab scale diffuse reflectance accessory kit) was fixed at the hopper outlet. Further details on the equipment setup are provided in previous works (Abatzoglou et al., 2014; Castellanos Gil et al., 2012).

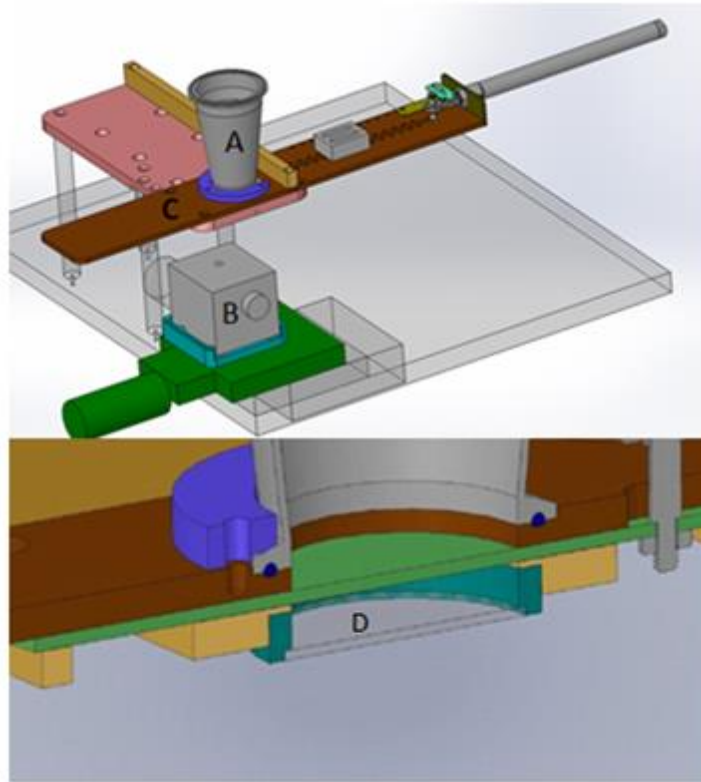


Figure 4.3 Equipment set-up. A conical hopper, B NIR probe, C guillotine system, D collector.

A shear-cell tester (FT4 rheometer) operated inside a controlled-humidity enclosure (20% residual humidity) was used to measure the internal (particle-particle) and external (particle-hopper wall) friction angles.

Methodology

The protocol used in this work was inspired by the pulse injection method, which is commonly used in reactor engineering to predict flow profiles using mean residence time distribution and its variance. The first step consists of introducing a discrete powder (called “pulsed powder”) inside a bed of a different powder. The second step consists of measuring the concentration of pulsed powder in the collector after each sequence of gravitational flow. This method was performed and published in previous works (Castellanos Gil et al., 2012; Salvas, Simard, & Abatzoglou, 2010).

In the present work, the conducted protocol has been defined as follows. Three powder layers were introduced inside the hopper (Figure 4.4):

- (1) A 150-mm continuous bed of DCP (340 g).
- (2) A 10-mm layer of pulsed powder (20 g of lactose) placed on top of the DCP layer.
- (3) The same DCP powder placed on top of the second layer.

The quantity of the pulsed powder does not affect the flow profile of the studied granular system. However, a sufficient quantity of the first bulk layer is necessary for use as a powder bed to ensure the distribution of the pulsed powder until its exit from the hopper.

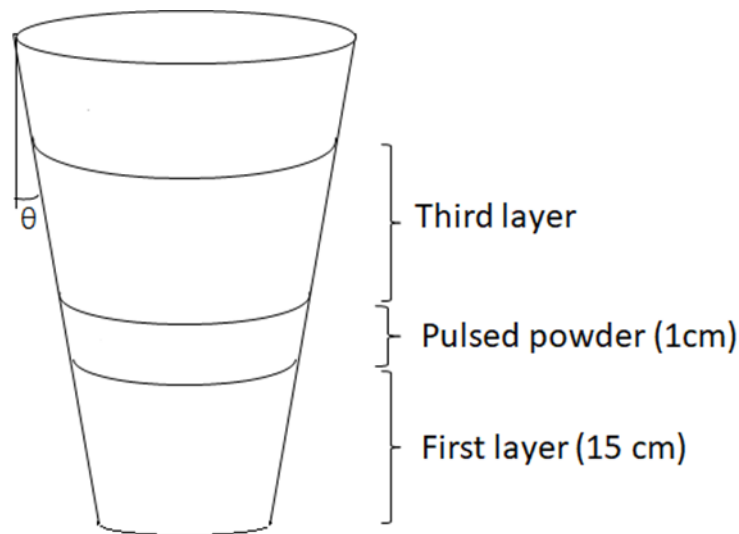


Figure 4.4 Schematic representation of the experimental protocol

The third layer aims to avoid the effect of the free surface on flow behavior. To define its optimal amount, a set of experiments was conducted inside a conical hopper (6° inclination angle) with different quantities of DCP as the third layer (Table 4.1).

The binary systems (lactose/DCP and lactose/ CaCO_3) size ratio was chosen to facilitate the distribution of pulsed powder (lactose) inside the bulk DCP layer without disturbing the flow behavior to avoid segregation via percolation. To maintain the same size ratio values in all

experiments, the sieving of powders was performed under the same conditions (i.e., sieving speed, powder quantity, and sieving duration). The size distribution of the granular systems is summarized in Figure 4.5.

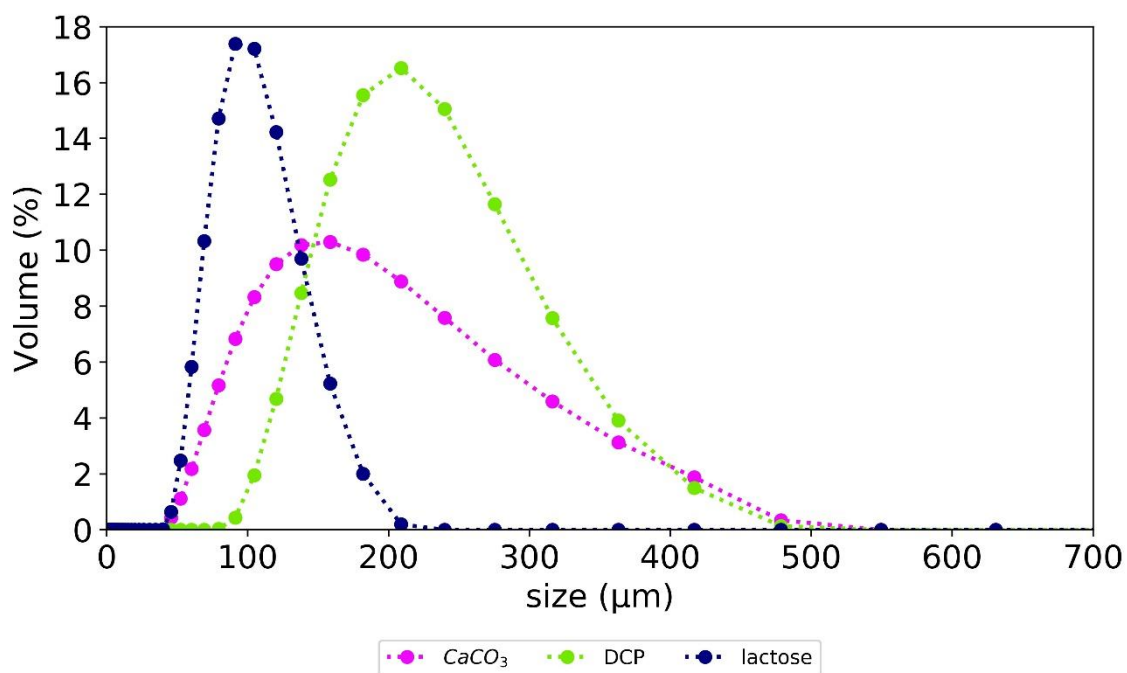


Figure 4.5 Size distribution of granular systems.

Tableau 4.1 Quantity of powder in the third layer

Experiment	Height of the third layer (DCP)
1	Free surface (0 g)
2	1 cm (65 g)
3	2.5 cm (126 g)
4	5 cm (250 g)
5	7.5 cm (350 g)
6	10 cm (450 g)
7	15 cm (700 g)
8	25 cm (1350 g)
9	30 cm (1870 g)

To ensure gravitational flow through the hopper, the guillotine was opened in a two-step movement left to right, and then right to left at the precise time opening (110 ± 0.2 ms on each side). This opening time was chosen to minimize radial disturbances caused by contact between the powder and the guillotine surface. The guillotine system optimization method was detailed in previous work conducted by our research team (Castellanos Gil et al., 2012). The powder is then collected in a transparent collector fixed at the hopper outlet. Once the collector was filled, the NIR probe was programmed to move under it to collect spectra at 61 points (Figure 4.6). These points were chosen as equidistant from the center of the collector to cover the maximum surface area of the powder. At each step, the collected spectra were used to calculate the concentration of lactose at the outlet of the hopper based on the calibration set previously prepared from 20 g of standard binary mixtures (three duplicates) with concentrations of 0, 20, 40, 60, 80, and 100 (w/w) with an accuracy of ± 0.02 mg. To obtain the same experimental

environment, each of the above mixtures was deposited at the collector of the setup, which was fixed at the hopper outlet.

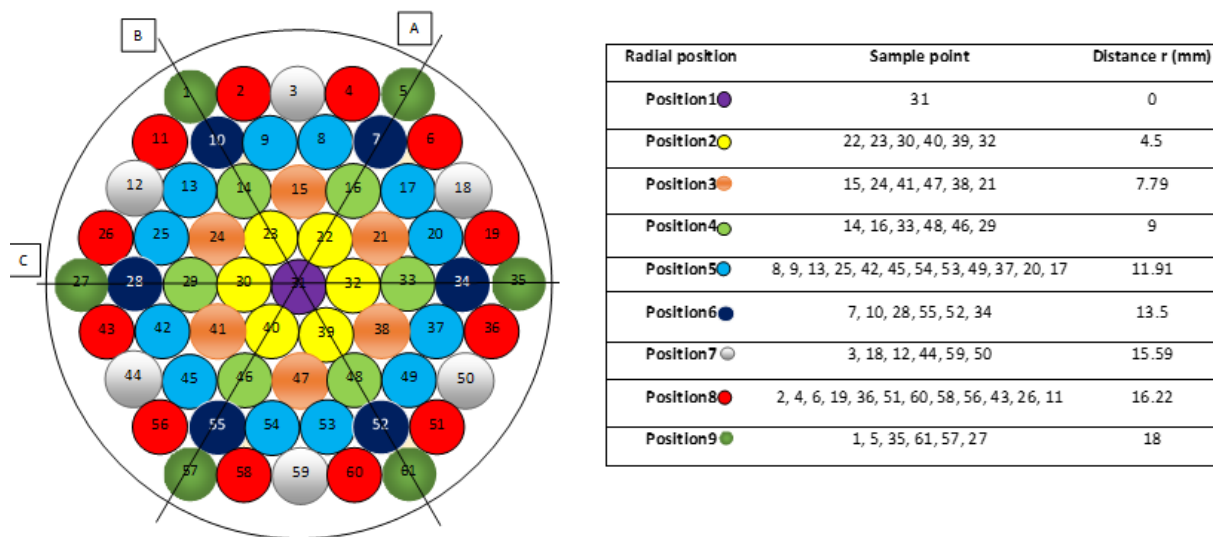


Figure 4.6 Schematic view of a collector. The axes A, B and C represent the radial positions along the diameter of the collector

The NIR spectra of all predefined mixtures were collected and presented in Figure 4.7. These were used to calibrate the NIR analysis through a PLS partial least squares regression and were then used to measure the composition of each sample over the gravitational flow.

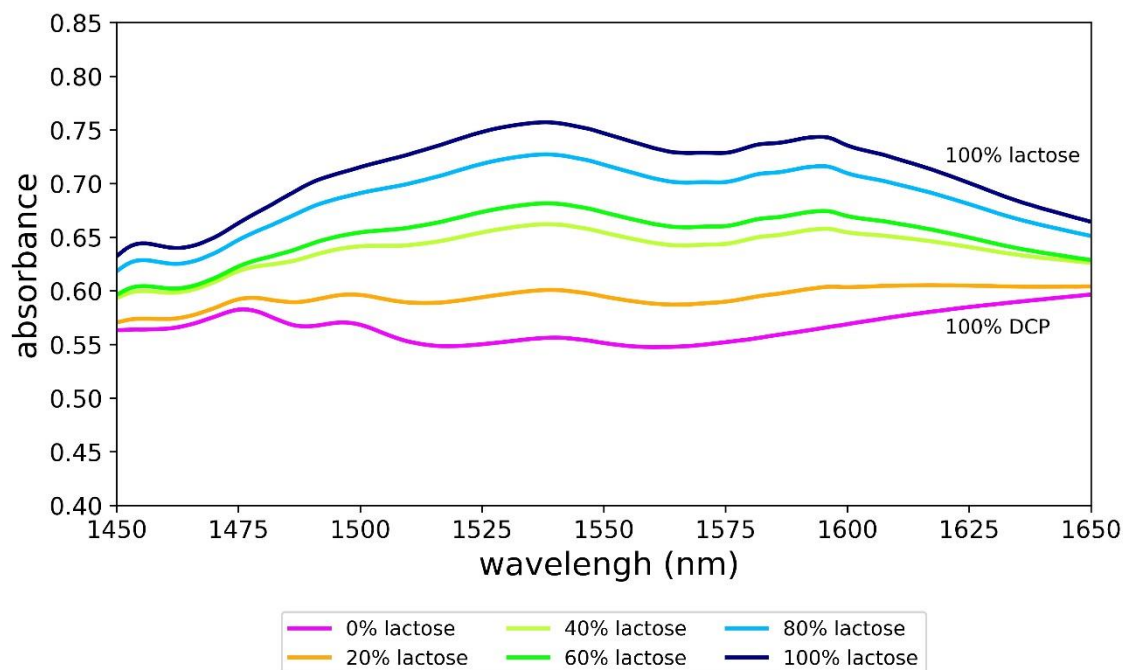


Figure 4.7 NIRS of pure DCP, lactose and their standard mixtures.

To minimize extraneous spectral variability, the relative humidity value (20% RH) was kept constant during all experiments. This RH was chosen from the results of a shear test performed on the powders used in the present work as a function of the residual humidity. The results of these tests are presented in Figure 4.8 (a) and Figure 4.8 (b) as internal and external friction angles, respectively. Both parameters are sensitive to the humidity, especially for lactose. An increase of the relative humidity leads to an increase in capillary forces which increases friction angles. By interpolating the values of friction angles in the Jenike chart design (Figure 1) as a function of hopper angles used in the present work, to maintain the mass flow regime, the maximum value of the wall friction angle must not exceed 22° . Consequently, the residual humidity corresponds to approximately 20% RH.

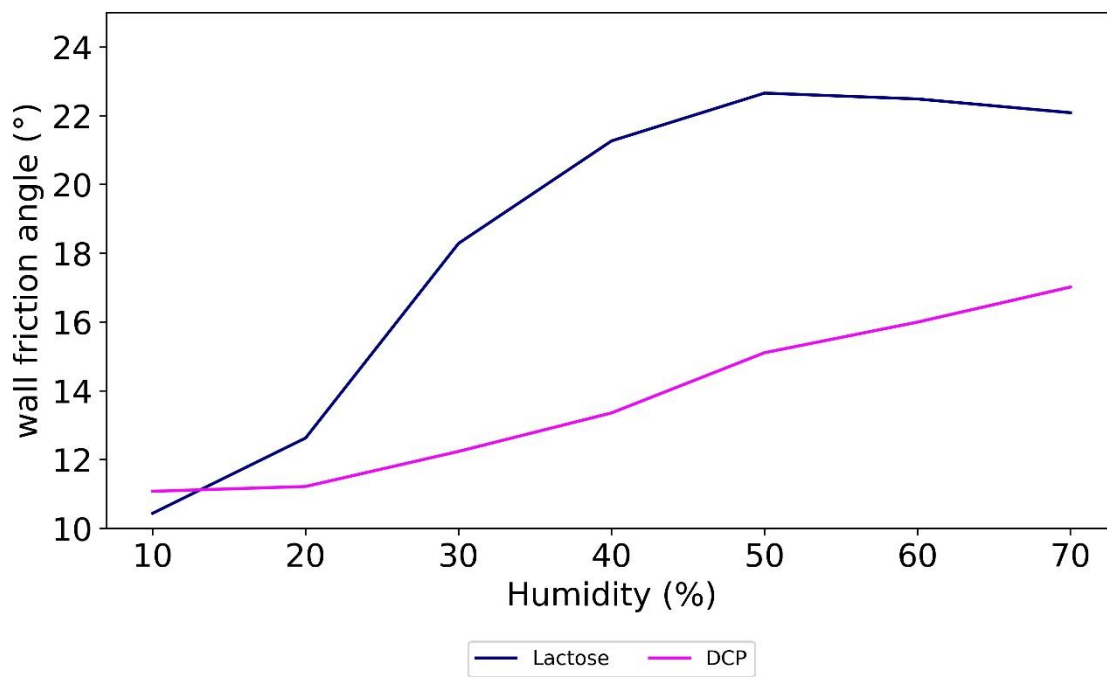
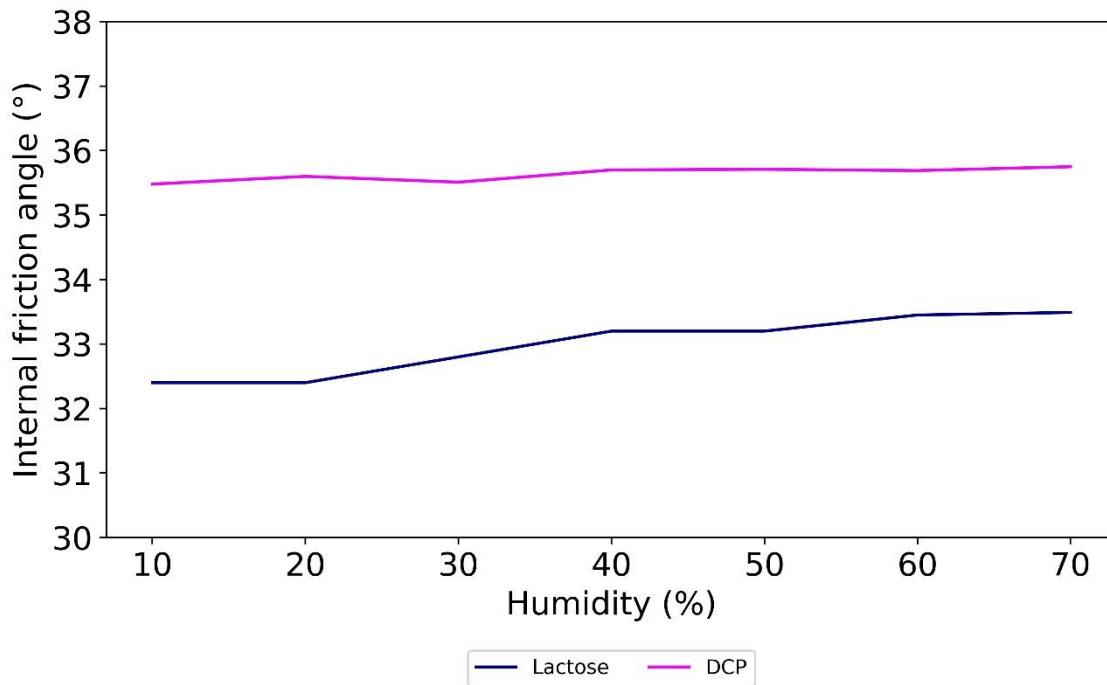


Figure 4.8 Effect of the humidity on the friction angles of lactose and DCP powders. (a) Internal friction angle. (b) Wall friction angle

Once the concentrations of lactose at each guillotine opening were calculated (61 concentrations at each sampling step), they were used to estimate the average residence time of the system at 61 points over time “t”. In general, average residence time is defined as the time that a particle of powder takes to exit a hopper, given by:

$$t_m = \int_0^{\infty} t E(t) dt \quad (4.7)$$

$$E(t) = \frac{c(t)}{\int_0^{\infty} c(t) dt} \quad (4.8)$$

The average residence time at each point on the collector was used to predict the radial flow velocity of the system:

$$U = H/t_m \quad (4.9)$$

To predict the radial velocity profile, nine radial positions were chosen on the surface of the collector while considering the symmetry of the hoppers. These nine positions are illustrated as numbered points in Figure 4.6. Each color represents a radial position defined as follows:

- **Position 1:** centerline position of the hopper (r = 0 mm)
- **Position 2:** average value of the equidistant sample points 22, 23, 30, 40, 39, and 32 (r = 4.5 mm)
- **Position 3:** average value of the equidistant sample points 15, 24, 41, 47, 38, and 21 (r = 7.79 mm)
- **Position 4:** average value of the equidistant sample points 14, 16, 33, 48, 46, and 29 (r = 9 mm)
- **Position 5:** average value of the equidistant sample points 8, 9, 13, 25, 42, 45, 54, 53, 49, 37, 20, and 17 (r = 11.91 mm)
- **Position 6:** average value of the equidistant sample points 7, 10, 28, 55, 52, and 34 (r = 13.5 mm)

- **Position 7:** average value of the equidistant sample points 3, 18, 12, 44, 59, and 50 ($r = 15.59$ mm)
- **Position 8:** average value of the equidistant sample points 2, 4, 6, 19, 36, 51, 60, 58, 56, 43, 26, and 11 ($r = 16.22$ mm)
- **Position 9:** average value of the equidistant sample points 1, 5, 35, 61, 57, and 27 ($r = 18$ mm).

The axial flow profile was calculated to determine the flow pattern (mass or funnel flow). After each opening of the guillotine, each sample was weighed and homogenized, then deposited in the collector to be scanned using the NIR probe.

The internal and external friction angles mentioned in Equation 4.6 were measured using an FT4 rheometer. Two rheological tests were then conducted: a shear test to obtain the internal angle of friction and a wall friction test to obtain the angle of friction between the powder and the walls of the hopper (Freeman Technology, 2020). All of these tests were performed at the same experimental humidity (20% RH).

Analysis of variance (ANOVA) and the Newman-Keuls test were applied to study the behavior of the parameters ζ and ω as a function of the properties of the granular system and hopper geometry (Montgomery, 2012).

4.2.5 Results and Discussion

Experimental protocol

To determine the optimal height of the third layer (DCP) which does not affect flow behavior the results of flow tests were plotted as residence time versus radial distance (Figure 4.9), which illustrates the impact of the third layer (DCP) on the residence time profile. The results indicate that the residence time profile is affected at lower heights (0 – 7.5 cm). While the third layer was higher than 7.5 cm, the radial profile of the residence time was steady and independent of the DCP height.

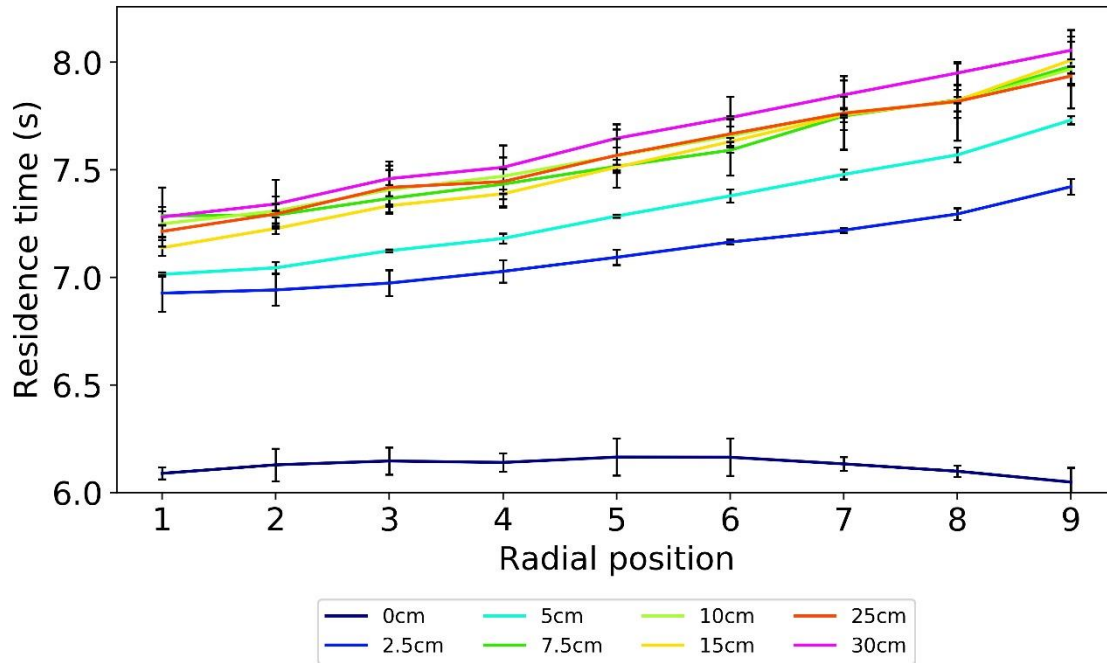


Figure 4.9 Residence time versus radial position as function of DCP height

The axial profile of the lactose concentration as a function of the number of guillotine openings (Figure 4.10) shows that the granular binary system follows a mass flow profile when the height of DCP is greater than 10 cm inside the conical hopper. Under this value, the graph shows two peaks, which is consistent with a funnel flow. Based on these results, and so as not to disturb the flow profile, the height of DCP (the third layer) was fixed at 15 cm for the following experiments.

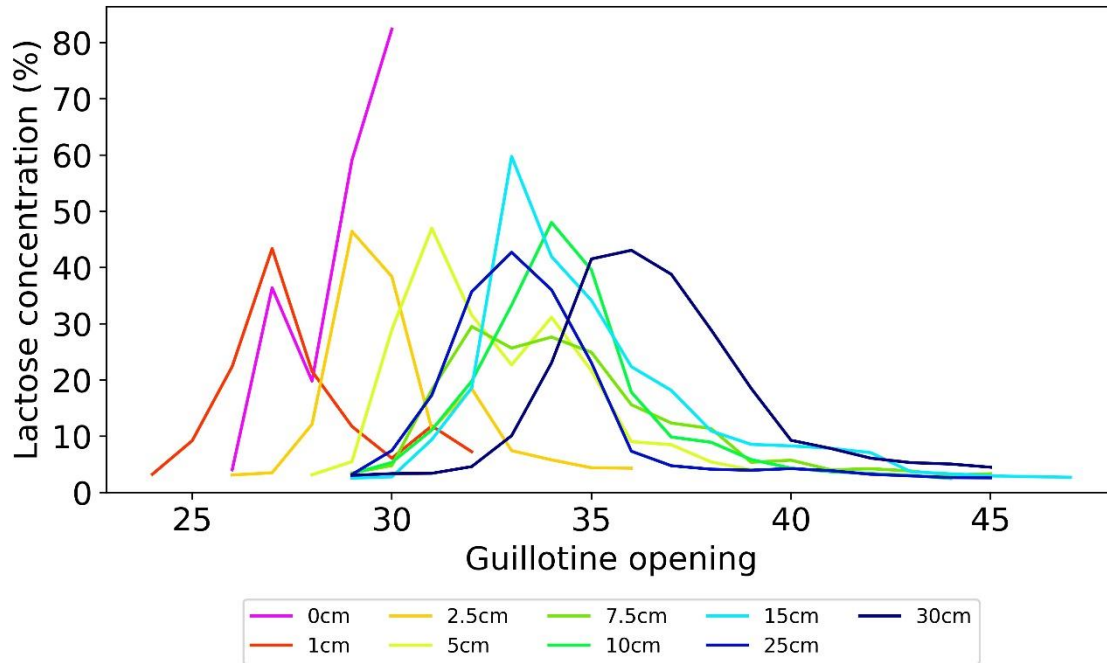


Figure 4.10 Axial profile of lactose concentration vs. guillotine opening

Experimental prediction of radial velocity profiles

The aforementioned gravitational flow experiments were performed to predict the radial velocity profile through hoppers of various inclination angles (6, 16, and 25°). The height of the three layers of powders inside the various hopper geometries was kept constant, as presented in Table 4.2.

Tableau 4.2 Height and quantities of powders inside the hopper

Height of powder	DCP (15 cm)	Lactose (1 cm)	DCP (15 cm)
Cylindrical hopper	200 g	15 g	200 g
Conical hopper 6°	340 g	20 g	700 g
Conical hopper 16°	600 g	50 g	2250 g
Conical hopper 25°	800 g	150 g	3350 g

To identify the shape of the radial profile along the entire diameter of the analyzed surface, three axes were chosen (Figure 4.6):

- A (nine radial positions: 5, 7, 16, 22, 31, 40, 46, 55, 57)
- B (nine radial positions: 1, 10, 14, 23, 31, 39, 48, 52, 61)
- C (nine radial positions: 27, 28, 29, 30, 31, 32, 33, 34, 35)

Due to the symmetry of the hoppers, the residence time profiles on these axes are similar, with a standard deviation lower than 3%. Based on these results, Figure 4.11 was created with the average values of these three axes at the entire diameter of the outlet. The results illustrate that the residence time profile has a flat shape for a cylindrical hopper. This implies that the powder bed flows at the same velocity in all radial positions (the powder near the wall of cylindrical hopper flows at the same velocity as that in the center). However, it is evident that the more the angle of inclination increases, the more the residence time profile takes a parabolic shape, with a minimum value at the centerline of the conical hopper ($r = 0$ mm)

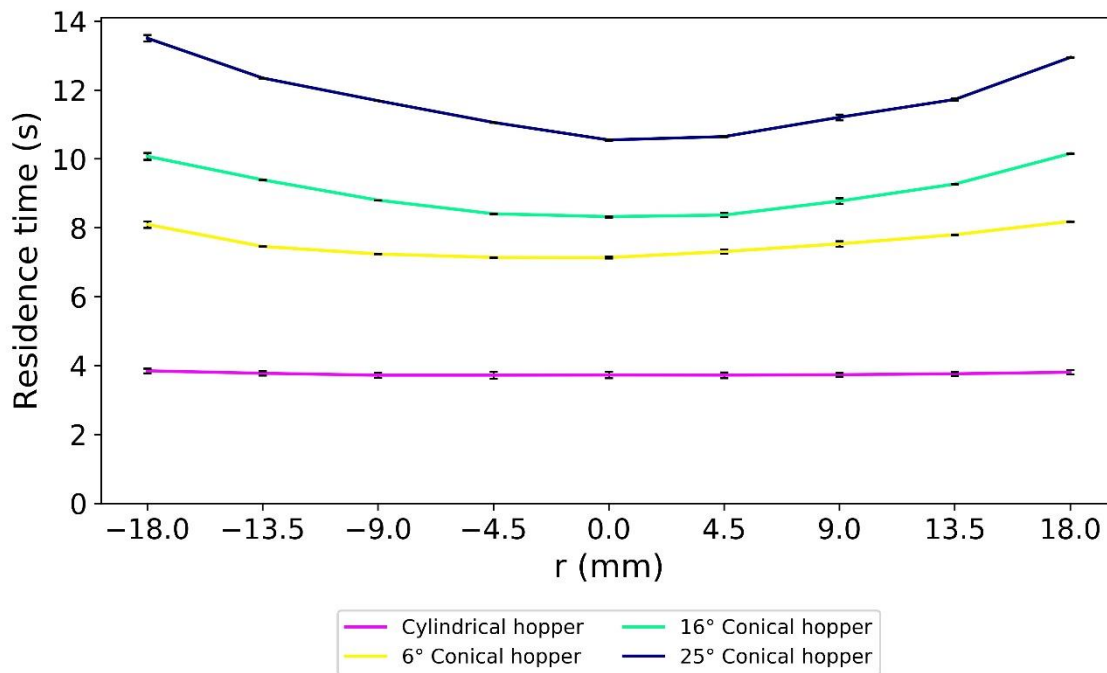


Figure 4.11 Radial residence time profile as function of conical hopper angle

Figure 4.12 illustrates flow velocity as a function of the equidistant radial positions (Figure 4.6) for various conical hoppers (6, 16, and 25° inclination). This figure demonstrates that the flow velocity of the granular system is maximal at the center of the conical hoppers and that it is not null at the walls (as for classical fluids); instead, it reaches a minimum value greater than zero at this position. As mentioned above, in flowing powder mixtures, the forces exerted on each particle influence nearby particles. Therefore, the hopper inclination does not affect only the velocity near the wall but rather the entire radial velocity profile values. These velocity results were also used to characterize the flow regime via the aforementioned MFI, which was given by the ratio of the mean particle velocity at the hopper wall to the mean particle velocity at the hopper centerline. The MFI values for each hopper (obtained from Equation 4.1) are presented in Table 4.3. According to Johansen and Jenike (Ketterhagen et al., 2009), the MFI values presented in this work indicate that the granular flow through the conical hoppers follows a mass flow behavior ($MFI > 0.3$).

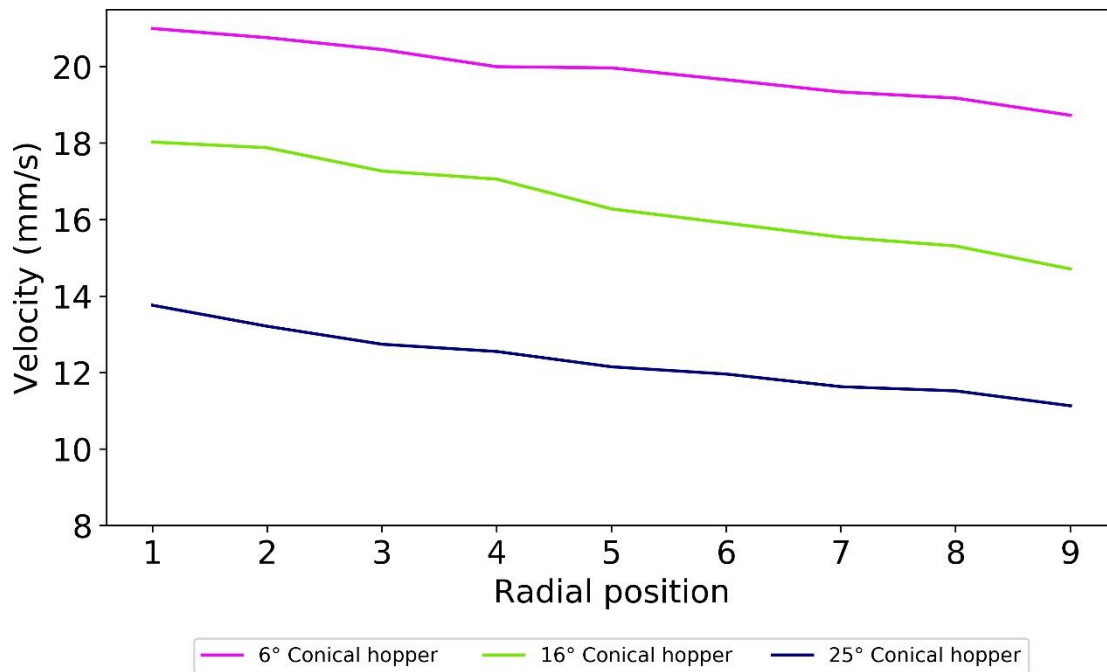


Figure 4.12 Radial velocity profile as function of conical hopper angle of DCP-Lactose binary system

Tableau 4.3 Mass flow index of the DCP/lactose binary system as a function of the conical angle

Hopper properties	MFI
Conical hopper 6° (Ra = 0.28–0.81µm)	0.89 ± 0.01
Conical hopper 16° (Ra = 0.28–0.81µm)	0.82 ± 0.01
Conical hopper 25° (Ra = 0.28–0.81µm)	0.81 ± 0.02
Conical hopper 16° (Ra = 1.2µm)	0.68 ± 0.03

Theoretical prediction of the radial velocity profile

This work seeks to propose a model to predict radial velocity profiles and validate them based on a reliable experimental protocol. The internal (particle-particle) and external (particle-hopper wall) friction angles referred to in Equation (4.4) were measured from the results of the shear test and wall friction test, respectively presented in Table 4.4. The model parameters ω and ζ were obtained via a non-linear regression method for the three hopper geometries (Table 4.5).

Tableau 4.4 Friction angles of the granular materials

Properties	Dicalcium phosphate	Calcium carbonate
Bulk density (g/ml)	0.63 ± 0.01	0.79 ± 0.02
Internal friction angle (°)	35.6 ± 0.2	32.1 ± 0.26
Wall friction angle (°) (Ra = 0.28 µm)	11.2 ± 0.1	12.8 ± 0.14
Wall friction angle (°) (Ra = 1.2µm)		21.7 ± 0.2

Tableau 4.5 Model parameter values for DCP/lactose and CaCO₃/lactose (95% confidence intervals)

Binary system	Conical angles	Parameter ω	Parameter ζ
CaCO₃/lactose	6° (Ra=0.28 μm)	0.54 (0.5, 0.57)	2.52 (2.25, 2.79)
	16° (Ra=0.28 μm)	0.90 (0.87, 0.94)	2.56 (2.40, 2.73)
	25° (Ra=0.28 μm)	0.93 (0.89, 0.98)	2.54 (2.21, 2.88)
DCP/lactose	6° (Ra=0.28 μm)	0.52 (0.5, 0.57)	2.51 (2.25, 2.72)
	16° (Ra=0.28 μm)	0.89 (0.82, 0.95)	2.54 (2.38, 2.89)
	25° (Ra=0.28 μm)	0.92 (0.85, 0.97)	2.52 (2.21, 2.75)
	16° (Ra=1.2 μm)	0.90 (0.81, 0.97)	2.53 (2.19, 2.82)

The results presented in Table 4.5 indicate that, for the DCP/lactose binary granular system the ζ parameter is independent of the conical angle of the hopper, and it takes an average value of 2.54 ± 0.02 . Moreover, the value of the ω parameter shows an important increase when the inclination angle is 16° compared to 6°. However, it remains nearly constant at 16 and 25° inclination angles.

To verify that these results are neither specific to the type of the binary free-flowing system, nor to the roughness of the previously used hoppers, the same experiments were conducted with a different continuous powder phase; in this case, CaCO₃ was used (the pulsed powder (lactose) was kept the same). First, the flow was conducted using the same experimental conditions (6, 16, and 25° inclination angles and Ra = 0.28–0.81 μm). In the second step, the roughness of a chosen hopper was changed to Ra = 1.2 μm to achieve a higher wall friction angle, provided that the same flow regime was maintained (Figure 4.1). The radial velocity profile illustrated in Figure 4.13 shows that the flow of this new binary system follows practically the same profile obtained with DCP; nevertheless, it is slower at higher wall roughness values.

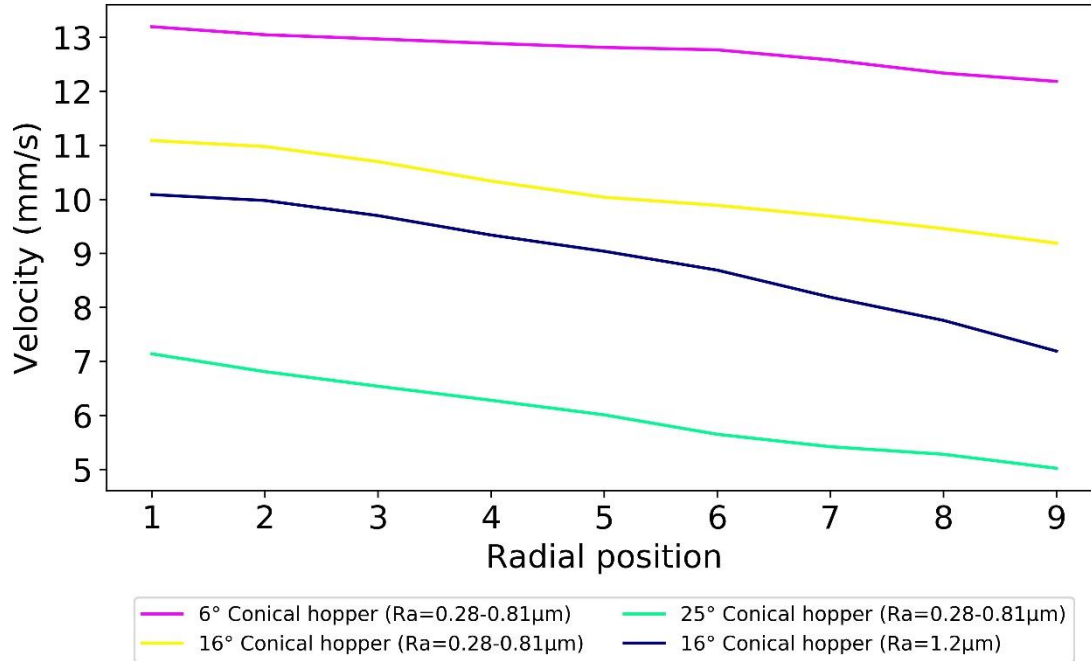


Figure 4.13 Radial velocity profile as function of conical hopper angle of CaCO₃-Lactose binary system

The results presented in Table 4.5 indicate that the parameters ω and ζ are independent of the type of free-flowing powder. Moreover, at the utilized experimental condition range, wall roughness does not affect these parameters.

To validate the aforementioned results on the two parameters ω and ζ , an ANOVA was performed on the dependence of these parameters upon powder type and hopper angle. These results are summarized in Tables 3.7 and 3.8 for ω and ζ , respectively, and they confirm that hopper angle only has a significant effect on ω , while the type of binary system does not affect ω or ζ . The Newman-Keuls test (Montgomery, 2012) was applied to determine whether the ω parameter can be considered constant at 16 and 25° inclination angles, as mentioned in Tables 3.5 and 3.6. According to the result of this analysis, inclination angles of 16 and 25° present a homogeneous group. However, the 6° inclination angle exhibits a significant difference compared to the previous angles. These results confirm that ω is constant at 16 and 25°

inclination angles. As previously mentioned, the ω parameter was introduced in the proposed equation to express the importance of hopper angle on velocity profiles. Thus, as hopper angles increase, an increasing amount of the powder weight is supported by the hopper walls until a critical value of inclination (determined by the present work as 16 and 25°). At higher inclination angles, we expect erratic flow or even bridging.

Tableau 4.6 ANOVA for powder type and hopper angle on ω

Source	Sum of squares	Degrees of freedom	Average squares	F value	Probability	Verdict
Powder	88.9E-6	1	88.9E-6	0.15	0.70	Not significant
Hopper angle	0.60	2	0.30	512.31	2.4E-12	Significant
Interaction	811.1E-6	2	405.6E-6	0.70	0.52	Not significant
Residual	0.01	12	583.3E-6			
Total	0.61	17				

Tableau 4.7 ANOVA for binary granular system type and hopper angle on ζ

Source	Sum of squares	Degrees of freedom	Average squares	F value	Probability	Verdict
Powder	272.2E-6	1	272.2E-6	2.13	0.17	Not significant
Hopper angle	0.9E-3	2	450E-6	3.52	0.06	Not significant
Interaction	144.4E-6	2	72.2E-6	0.56	0.58	Not significant
Residual	0.002	12	0.0001			
Total	0.003	17				

4.2.6 Conclusion

The focus of the present work was to predict the radial profile of gravitational granular flow using a semi-empirical equation inspired by the radial flow profile equation used for classical fluids. For granular flow, the radial profile strongly depends on system properties such as cohesion and adhesion forces. From this perspective, we proposed the introduction of these properties in the developed equation as friction angles between the particles and the particle wall of hoppers. An important parameter ω was also introduced to express the importance of the hopper angle. This work led to two main results:

1. Experimental prediction of the radial velocity profile: NIRS was used to predict the radial flow profile of a binary granular system inside cylindrical and conical hoppers. The experimental protocol was inspired by the pulse injection method, with the aim of predicting the concentration of pulsed powder at the outlet of a hopper. The results indicate that the hopper angle influences the flow profile because the more the angle is inclined, the more the shape of the radial profile becomes parabolic with a maximal value

at the center of hopper. The conical hoppers studied in the present work ensure a mass flow with $\text{MFI} > 0.3$.

2. Validation of the proposed semi-empirical equation: The proposed equation was validated using a non-linear regression method. We determined that parameter ζ is independent of the studied characteristics (i.e. angle of inclination, free-flowing powder type and wall roughness) and was fixed as 2.53 ± 0.01 . In contrast, parameter ω exhibits an important dependence on hopper angle at lower inclinations (6° and 16°). When operating in the mass flow regime at a higher inclination (25°), this parameter becomes constant and independent of the hopper angle.

While the proposed semi-empirical equation has been proven valid and efficient under the experimental conditions considered in the present work, additional remains necessary to confirm the robustness and universality of the proposed equation for other experimental conditions (e.g. various granular system types, hopper geometries, and wall roughness) in the mass flow regime.

4.2.7 Acknowledgments

The authors are indebted to Pfizer Canada Inc., the National Science & Engineering Research Council of Canada, and Université de Sherbrooke for financial and material support. The technical assistance of Serge Gagnon, Marc Couture, and Henry Gauvin is gratefully acknowledged.

Chapitre 5 PREDICTION DU PROFIL AXIAL ET RADIAL DE LA CONTRAINTE NORMALE

5.1 Avant-propos

Auteurs et affiliation :

Oumaima Chaib : Étudiante au doctorat, Université de Sherbrooke, Faculté de génie, Département de génie chimique et de génie biotechnologique, 2500 Boulevard de l'Université de Sherbrooke Québec J1K 2R1, Canada

Ines Esma Achouri : Professeure, PhD, Université de Sherbrooke, Faculté de génie, Département de génie chimique et de génie biotechnologique, 2500 Boulevard de l'Université de Sherbrooke Québec J1K 2R1, Canada

Ryan Gosselin : Professeur, PhD, Université de Sherbrooke, Faculté de génie, Département de génie chimique et de génie biotechnologique, 2500 Boulevard de l'Université de Sherbrooke Québec J1K 2R1, Canada

Nicolas Abatzoglou: Professeur, PhD, Université de Sherbrooke, Faculté de génie, Département de génie chimique et de génie biotechnologique, 2500 Boulevard de l'Université de Sherbrooke Québec J1K 2R1, Canada. Titulaire de la Chaire Pfizer sur les technologies d'analyse de procédés en génie pharmaceutique.

Date de soumission : 24 juillet 2020

État d'acceptation : accepté pour publication dans le journal scientifique 'The Canadian Journal of Chemical Engineering'

Contribution au document :

Ce deuxième article répond au deuxième objectif de ce doctorat, qui est le développement d'un modèle mathématique prédisant le profil radial et axial de la contrainte normale appliquée lors

de l'écoulement gravitationnel des systèmes granulaires en fonction de leur vitesse d'écoulement.

Titre en français :

Écoulement gravitationnel massique de poudre à travers des trémies coniques Partie II: Modèle mathématique prédisant les profils axial et radial des contraintes normales en fonction de la vitesse d'écoulement.

Résumé en français :

Dans la première partie de ce travail, une équation semi-empirique a été développée pour prédire les profils radial et axial de la vitesse d'écoulement gravitationnel des systèmes granulaires dans des trémies coniques. Les paramètres phénoménologiques de cohésion et d'adhésion présentés sous forme d'angles de frottement ainsi que l'angle de la trémie sont les variables indépendantes de cette équation. Cette deuxième partie est une extension de l'analyse Janssen prédisant le profil axial et radial de la contrainte normale appliquée. Pour cela, des bilans de force en coordonnées cylindriques sont effectués pendant l'écoulement gravitationnel. Les équations différentielles partielles résultantes sont complétées par la loi de Newton, qui relie les contraintes normales aux vecteurs de vitesse calculés dans la première partie de ce travail, présentant des composantes axiales et radiales. Le modèle proposé est en accord avec la littérature disponible sur les profils de contrainte normale.

Mots clés :

Profil de vitesse d'écoulement granulaire, contrainte normale, trémie conique, propriétés de frottement, Bilan de forces

5.2 Gravity mass powder flow through conical hoppers part II: A mathematical model predicting the axial and radial profiles of normal stresses from flow velocity measurements

Oumaima Chaib, Ines Esma Achouri, Ryan Gosselin, Nicolas Abatzoglou*

Université de Sherbrooke, Department of Chemical & Biotechnological Engineering

Pfizer Industrial Research Chair on PAT in Pharmaceutical Engineering

Sherbrooke, Québec, CANADA

(*) Corresponding author: Nicolas.Abatzoglou@USherbrooke.ca

5.2.1 Abstract

In part I of this work, a semi-empirical equation was developed to predict the radial velocity profile of gravity-driven, free-flowing powders in conical hoppers. Phenomenological cohesion and adhesion parameters, such as friction angles as well as hopper angle, are the independent variables of this equation. This second part is an extension of the Janssen analysis predicting the axial profile of the applied normal stress. Force balances in cylindrical coordinates are performed for the conical gravity flows. The resulting partial differential equations are complemented by Newton's law, which links the normal stresses with velocity vectors presenting axial and radial components. The proposed model is in agreement with the available literature on normal stress profiles.

Keywords

Powder velocity profile, normal stress profile, conical hopper, friction properties, granular applied stresses

5.2.2 Introduction

Stress distributions inside granular systems determine the flow behaviour inside their containers (i.e., vertical silos and conical hoppers). Two principal stresses are defined: (1) normal axial stress (σ_v) acting perpendicularly to the granular bed and (2) normal radial stress (σ_h) transmitted to the container walls. Contrary to Newtonian fluids, these two orthogonal stresses are not equal, and they are linked by a Janssen coefficient (Rhodes, 2008; D. Schulze, 2008) defined in the present work as k_j :

$$k_j = \frac{\sigma_h}{\sigma_v} \quad (5.1)$$

These two normal stresses are presented in Mohr's circle; the vertical stress is presented as a major principal stress, and the small stress—horizontal stress—is a minor principal stress. Thus, k_j is the ratio of the major and minor principal stresses; its value can be measured using shear testers (e.g., an FT4 powder rheometer) as a function of internal angle friction as follows (Khelil & Roth, 1990; Dietmar Schulze et al., 2008):

$$k_j = \frac{1 - \sin \delta}{1 + \sin \delta} \quad (5.2)$$

The analysis of the principal stresses inside cylindrical and conical hoppers is based on the Janssen model applied to the static or dynamic states of the granular system inside cylindrical hoppers. This model indicates that, for a shallow powder bed, the normal stresses are quasi-equivalent to the static pressure of fluids, which is a linear function of powder depth. However, normal stress dependence with height decays exponentially for a deeper powder bed (Figure 5.1).

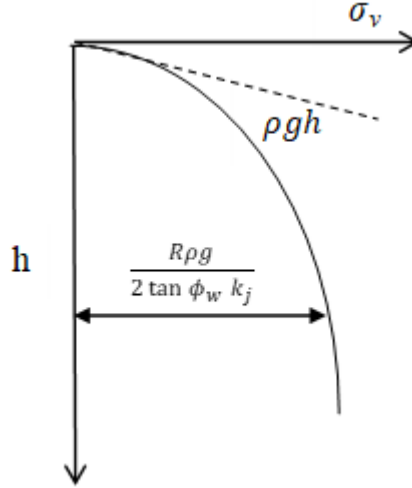


Figure 5.1 Janssen model for cylindrical hoppers. Adapted from (Dietmar Schulze et al., 2008)

Janssen's model has been developed for cylindrical silos. In conical hoppers, however, the transmission of the applied stresses depends on the inclination angle. (Generalov, 1985; Z. Mroz and CZ. Szymanski, 1971) Throughout the 1960s, several works aimed at developing mathematical models to predict both normal and wall stresses inside bin and hopper sections during static and dynamic flow states. (D. M. Walker, 1966; A. W. Jenike, 1964b; Johanson, 1964; Walters, 1973) In the case of static flows in conical hoppers, Jenike and Walker investigated the applied stresses on the walls considering the effect of both the internal and powder-walls friction angles and proposed Equation (5.3), where they assume that the average normal stress is equal to the hydrostatic pressure without any shear stress on the vertical plane. (Walters, 1973)

$$\sigma_w = \rho g \lambda \left(h + \frac{\sigma_{v0}}{\rho g} \right) \quad (5.3)$$

Where λ was determined by Walters et al. (Walters, 1973) and Jenike (A. W. Jenike, 1964a; Johanson, 1964) to be a function of internal and wall friction angles:

$$\lambda = \frac{\tan \alpha}{\tan \phi_w + \tan \alpha} \quad (\text{A. W. Jenike, 1964a; Johanson, 1964})$$

$$\lambda = \frac{\sin 2\alpha \cos \phi_w}{\sin(\phi_w + 2\alpha) + \sin \phi_w} \quad (\text{D. M. Walker, 1966; Walters, 1973})$$

In dynamic flows, the Janssen model is reliable for cylindrical hoppers provided that the walls are perfectly vertical and frictionless. (Shamlou, 1988) In conical hoppers, however, the models Jenike and Walker propose in Equation (5.3) and that Janssen proposes (Figure 5.1) underestimate the load on the walls because a fraction of the weight component is transmitted to the walls due to their inclination (e.g., the half-angle of the conical hopper). (D. M. Walker, 1966; A. W. Jenike, 1964b; Johanson, 1964; Walters, 1973) Thus, an equation based on the effect of the internal friction angle, the angle of powder-wall friction and the angle of the hopper was developed by Walker et al. 1966 and Walter et al. 1973, as shown in Equation (5.4) (D. M. Walker, 1966; Walters, 1973):

$$\sigma_w = k_1 \left\{ \frac{\rho g h}{k_2 - 1} \left[1 - \left(\frac{h}{h_0} \right)^{k_2 - 1} \right] + \sigma_{v0} \left(\frac{h}{h_0} \right)^{k_2} \right\} \quad (5.4)$$

Where:

$$k_1 = \frac{1 + \sin \delta \cos 2\psi}{1 - \sin \delta \cos(2\alpha + 2\psi)}, k_2 = 2(k_3 - 1), k_3 = k_1 \left(\frac{\tan \alpha + \tan \phi_w}{\tan \alpha} \right), 2\psi = \phi_w + \sin^{-1} \left(\frac{\sin \phi_w}{\sin \delta} \right)$$

Equation (5.4) is based on the force balance at equilibrium on the entire slice of material in a conical hopper. It only takes into account the radius R as a function of the axial position h . It estimates the average wall stress at any height h . The parameters k_1 , k_2 and k_3 were calculated from Mohr's circle. (D. M. Walker, 1966; Walters, 1973)

In accordance with the aforementioned models, the normal stresses within granular systems flowing through a conical hopper:

- (a) increase from zero at the top surface (no stress acting on the top surface of the powder) to their maximum at a certain depth
- (b) then, a decline is observed to reach zero at the hopper outlet (Figure 5.2)

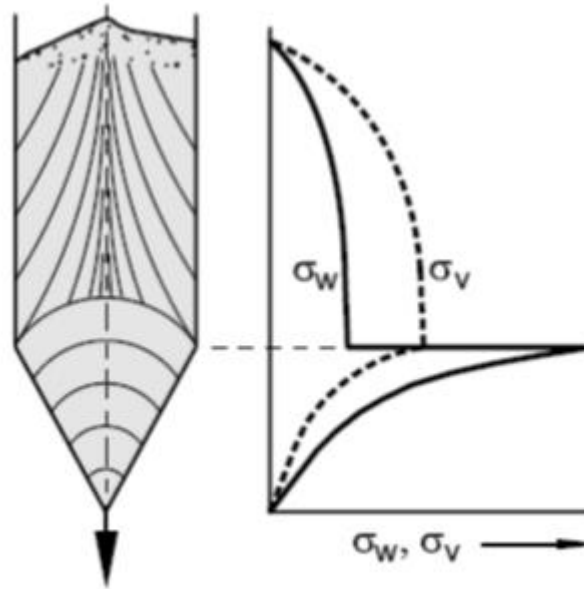


Figure 5.2 Qualitative distribution of the normal stress and the wall stress as a function of the axial position (D. Schulze, 2008)

The discontinuity in the stresses' state is due to the “switch” between an “active stress field” to a “passive stress field.”(Faqih et al., 2010; D. Schulze, 2008) The active stress field takes place when the granular system is compressed vertically by the force of gravity, resulting in greater vertical stresses compared to horizontal ones. Thus, the major principal stresses are oriented vertically along the silo axis in the upper part of the hopper. At the transition between the silo and conical hopper, the major principal stresses rotate in the direction of the walls in the horizontal direction, as occurs in convergent hoppers (the bulk solid is dilated vertically and compressed horizontally), resulting in higher horizontal stresses than vertical ones. This state of stress is called the passive stress field.(Faqih et al., 2010; D. Schulze, 2008)

It should be noted that all models discussed until now regard mass flow regimes and are considered semi-quantitative estimations of the average normal stress axial profile inside silos and hoppers (i.e., the axial profile indicates how the stress changes according to the depth but not according to the radius of the hopper). (Saleh et al., 2018)

The distribution of radial stresses as a function of the hopper radius was studied by Moreea et al. 1996 using the method of characteristics. With the assumption that there are no forces applied to the top of the powder surface, they found a plug flow regime in the upper part of the hopper (velocity is constant over the radius). However, in the downward direction, both normal stress and velocity radial profiles take a parabolic form. (A. W. Jenike, 1964a) The radial distribution stress profile is directly proportional to the radius of the hopper, whereas the velocity profile presents a maximum value at the centerline of the hopper. (A. W. Jenike, 1964b; Moreea & Nedderman, 1996)

In Part I of this work (Chapter 4), a semi-empirical equation was developed and validated to predict the radial velocity profile and residence time distribution of gravity-driven, free-flowing powders (mass flow type) in conical hoppers. This equation takes into account the effects of cohesion and adhesion presented as friction angles (ϕ_w and δ) as well as the angle of the hopper expressed in the ω parameter.

$$U(r) = U_{max} \left[1 - (\sin\delta)^{(1-r/R)} \times \omega \times (\sin\phi_w)^{(r/R)} \times \left(\frac{r}{R}\right)^\zeta \right] \quad (5.5)$$

Where $U(r)$ is radial velocity (mm/s), U_{max} is centerline velocity (mm/s), ω is a parameter depending on the angle of hopper, ζ is constant, r is the radial position (mm), R is the radius at a given height, δ is the internal friction angle ($^\circ$) and ϕ_w is the powder-wall friction angle ($^\circ$).

The equation was experimentally tested via a near-infrared spectroscopy (NIRS)-based methodology (see Part I). The experimental protocol was inspired by the pulse injection method, which predicts the concentration of pulsed powder at the hopper outlet using the mean residence time distribution. The model parameters ω and ζ were obtained via non-linear regression; three

symmetrical hoppers angles (6° , 16° , 25°) and two free-flowing binary systems were used in the design of these experiments. The main results are:

1. The flow velocity of the granular system is maximal at the center of the conical hoppers and low, but not zero, at the walls (as opposed to classical fluids).
2. ζ is independent of the type of system used (as long as it is free flowing) and the inclination angle. It has a value of 2.53 ± 0.01 .
3. ω presents an important dependence of the radial velocity profile on the hopper angle at lower inclinations (6° and 16°). At a higher inclination (25°), this parameter becomes independent of the hopper angle (i.e., it has the same value at hopper angles of 16° and 25°).

Further details on the model development leading to Equation (5.5) are provided in part one (Chapter 4).

The present work is an extension of the Janssen analysis. It focuses on the development of a new methodology predicting normal stress profiles using:

1. The previously developed radial velocity equation shown in Equation (5.5)
2. Force balances
3. Newton's law of motion.

5.2.3 Analysis of the applies forces inside conical hoppers

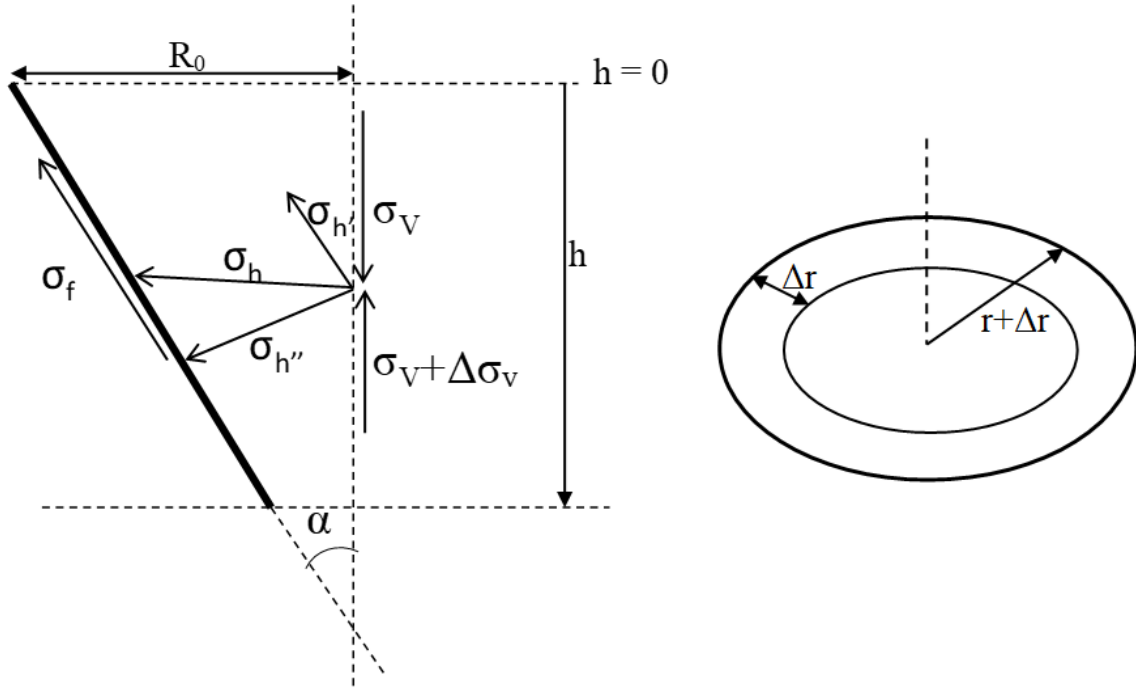


Figure 5.3 Stresses applied on an annular differential volume of powder inside a symmetrical conical hopper

In conical hoppers, the radius changes as a function of depth h according to:

$$R = R_0 - h \tan \alpha \quad (5.6)$$

Considering a slice of infinitesimal thickness Δh at a depth h , a force balance was performed through the differential annular space defined between positions (r) and $(r + \Delta r)$, as presented in Figure 5.3.

➤ Where σ_v is the normal stress applied to the top surface of the slice. As a result, $\sigma_v + \Delta \sigma_v$ stress acts upwards on the powder. Thus, the net normal forces for a conical hopper are:

$$2\pi r \Delta r [\sigma_v - (\sigma_v + \Delta \sigma_v)] \quad (5.7)$$

➤ Referring to Janssen analysis,(Rhodes, 2008) the stress applied to the inclined wall by the powder $\Delta\sigma_h$ (perpendicular to $\Delta\sigma_v$) can be written as:

$$\Delta\sigma_h = k_j \Delta\sigma_v \quad (5.8)$$

As the hopper walls are inclined, σ_h has two components:

$$\vec{\sigma}_h = \vec{\sigma}_{h'} + \vec{\sigma}_{h''} \quad (5.9)$$

$$\begin{cases} \vec{\sigma}_{h''} = \vec{\sigma}_h \cos \alpha \\ \vec{\sigma}_{h'} = \vec{\sigma}_h \sin \alpha \end{cases}$$

As $\sigma_{h''}$ is perpendicular to the wall and $\sigma_{h'}$ is parallel to it, the resulting total friction stress $\Delta\sigma_f$ is:

$$\Delta\sigma_f = \sigma_{h''} \tan \phi_w + \sigma_{h'} \quad (5.10)$$

By substituting $\sigma_{h'}$ and $\sigma_{h''}$ into Equation (5.10), the total wall friction force in the horizontal direction becomes:

$$2\pi r \Delta h k_j (\cos \alpha \tan \phi_w + \sin \alpha) \cos \alpha \Delta\sigma_v \quad (5.11)$$

Equation (5.11) indicates that, for conical hoppers, the wall friction forces do not depend only on the friction angles but also on the hopper angle.

➤ The gravitational force of the differential annular slice is:

$$2\pi r \Delta r \Delta h \rho g \quad (5.12)$$

Thus, the sum of the principal forces for conical hoppers is:

$$2\pi r \Delta r \Delta\sigma_v + 2\pi r \Delta r \Delta h \rho g - 2\pi r \Delta h K \Delta\sigma_v \quad (5.13)$$

Where:

$$K = k_j (\cos \alpha \tan \phi_w + \sin \alpha) \cos \alpha \quad (5.14)$$

The total forces applied inside the powder bed in a dynamic state (gravitational flow) cannot be equal to zero as in a static state, but rather can be expressed using Newton's law of motion:

$$\sum F = \Delta m \cdot a \quad (5.15)$$

the acceleration a can be expressed as:

$$a = \frac{\partial u}{\partial t} \quad (5.16)$$

where

$$\partial t = \frac{\partial h}{U(h, r)} \quad (5.17)$$

Δm is the mass of an annular slice of material displaced through the hopper; it can be expressed as a function of the volume Δv and the bulk density of the powder:

$$\Delta m = \rho \cdot \Delta v \quad (5.18)$$

For an annular slice of infinitesimal thickness Δh , the volume of the truncated cone can be written as:

$$\Delta v = \pi \Delta h \Delta r 2r \quad (5.19)$$

Thus, the applied forces, according to Newton's law, are:

$$\sum F = \rho \pi \Delta h \Delta r 2r \frac{\partial U}{\partial h} U(h, r) \quad (5.20)$$

As the material flows through the hopper, the quantities presented in Equation (5.13) and Equation (5.20) are equal. By dividing both sides by $\Delta h \Delta r$, we obtain:

$$-2r \frac{\partial \sigma_v}{\partial h} + 2r \rho g - 2r \frac{\partial \sigma_v}{\partial r} K = \rho 2r \frac{\partial U}{\partial h} U(h, r) \quad (5.21)$$

The final differential equation of the force balance is:

$$-\frac{\partial \sigma_v}{\partial h} + \rho g - K \frac{\partial \sigma_v}{\partial r} = \rho \cdot \frac{\partial U}{\partial h} U(h, r) \quad (5.22)$$

From Equation (5.22), we can express the normal stress radial profile with Equation (5.23):

$$\frac{\partial \sigma_v}{\partial r} = \frac{1}{K} \left[\rho g - \frac{\partial \sigma_v}{\partial h} - \rho \frac{\partial U}{\partial h} U(h, r) \right] \quad (5.23)$$

Where:

➤ K is calculated using Equation (5.14).

$U(h, r)$ is calculated using Equation (5.5). For this, it is necessary to estimate the centerline velocity U_{max} as a function of depth through the hopper h . Assuming the bulk density of the powder to be constant throughout the hopper, U_{max} can be calculated from the continuity equation as follows:

$$U_n(R_n, h_n) = U_{n+1}(R_{n+1}, h_{n+1}) \quad (5.24)$$

➤ $\frac{\partial U}{\partial h}$ is then calculated from the matrix $U(h, r)$

➤ $\frac{\partial \sigma_v}{\partial h}$ is calculated from the equilibrium, where all applied forces on the entire hopper are equated as follows:

$$\pi R^2 \sigma_v + \pi R^2 \rho g \Delta h - \pi R^2 (\sigma_v + \Delta \sigma_v) - 2\pi R K \sigma_v = 0 \quad (5.25)$$

We can write:

$$\frac{\Delta \sigma_v}{\Delta h} + \frac{2K}{R} \sigma_v = \rho g \quad (5.26)$$

Where R is the radius of the hopper as a function of the depth h and the radius R_0 at the top surface $h = 0$.

In the case where no external forces are applied to the upper surface of the powder ($\sigma_{v0} = 0$), the solution of the integral of this differential equation (first order linear ordinary differential

equation) gives a value of σ_v according Equation (5.27) whose derivative $\frac{\partial \sigma_v}{\partial h}$ can be calculated as:

$$\sigma_v(h) = \frac{\rho g}{2K - \tan \alpha} R \left[1 - \left(\frac{R}{R_0} \right)^{(2K - \tan \alpha) / \tan \alpha} \right] \quad (5.27)$$

Once all parameters of Equation (5.23) are calculated, the σ_v profile can then be predicted as a function of both the radial and axial positions r and h .

5.2.4 Application of the proposed mathematical model

Materials and Methods

Materials

Three common pharmaceutical excipients were used: Lactose 316 N.F. Fast Flo (Foremost Farms, Rothschild, Wisconsin, USA), dicalcium phosphate, dihydrate (DCP) (DI-TAB, Innophos, Inc., USA) and calcium carbonate (CaCO_3) (Destab, 90S, ultra 250, USA).

Methods

The experimental protocol was inspired by the pulse injection method using mean residence time distribution. It consists of introducing a discrete layer of powder called “pulsed powder” inside a bed of another powder and measuring its concentration at the hopper outlet after each sequence of gravitational flow using NIRS. For this, three powder layers were introduced inside conical hoppers:

- (1) A 150 mm continuous bed of powder “A.”
- (2) A 10 mm layer of pulsed powder “B” placed on top of powder “A.”
- (3) A 150mm powder “A” was placed on top of the second layer.

Further details on the experimental protocol are provided in a previous work published by our team (Chapter 4).

The internal and external friction angles presented in Equation (5.5) were measured using the FT4 rheometer in two rheological tests, a shear test to obtain the internal angle of friction and a wall friction test to obtain the angle of friction between the powder and the hopper walls (depending on the wall roughness) (Freeman Technology, 2020).

Results and Discussion

The experimental results of the velocity radial profile used in the present work are taken from our previous work (Chapter 4). They are summarized in Figure 1 as a function of the radial position (from the walls, “position 9,” to the centerline, “position 1”).

Tableau 5.1 Velocity radial profile values ($\times 10^{-3}$ m/s). Radial position 1 represents the centerline, whereas position 9 represents the position near to the wall

Granular system	DCP/lactose			CaCO ₃ /lactose			
Radial position	6°	16°	25°	6°	16°	16° ^a	25°
9	18.7	14.7	11.1	12.2	9.2	7.2	5.0
8	19.1	15.3	11.5	12.3	9.4	7.8	5.2
7	19.3	15.5	11.6	12.6	9.6	8.2	5.4
6	19.6	15.9	11.9	12.8	9.8	8.7	5.6
5	19.9	16.2	12.1	12.8	10.0	9.0	6.0
4	20.3	17.0	12.5	12.9	10.3	9.3	6.3
3	20.4	17.2	12.7	13.0	10.7	9.7	6.5
2	20.7	17.8	13.2	13.1	10.9	9.9	6.8
1	21.0	18.0	13.7	13.2	11.1	10.1	7.1

^a Ra = 1.2 μm

The experimental results provided in Table 5.1 represent the flow velocity profile as a function of equidistant radial positions for various conical hoppers (6°, 16° and 25° inclinations). These results demonstrate that the flow velocity of the granular system is maximal at the centerline of conical hoppers (position 1), and it reaches a non-zero minimum value at the walls. These results were used to calculate both $U(h, r)$ and $\frac{\partial U}{\partial h}$ using Equation (5.5) and Equation (5.24).

In the present work, Equation (5.5) is used to predict the velocity profile of gravitational, free-flowing, binary systems as a function of friction properties. The ω parameter values presented in this equation were calculated in our previous work (Chapter 4) via non-linear regression for three hopper geometries. Their values are summarized in Table 5.2 for two binary systems flowing inside a conical hopper (6°, 16° and 25° hopper angles and two wall roughness values: $Ra = 0.28 \mu\text{m}$ and $Ra = 1.2 \mu\text{m}$).

Tableau 5.2 ω parameter values of Equation (5) (95% confidence intervals)

Hopper angle (°)	Ra (μm)	Binary system	ω
6	0.28	DCP/Lactose	0.54 (0.5, 0.57)
	0.28	CaCO ₃ /Lactose	0.52 (0.5, 0.57)
16	0.28	DCP/Lactose	0.90 (0.87, 0.94)
	0.28	CaCO ₃ /Lactose	0.89 (0.82, 0.95)
	1.2	CaCO ₃ /Lactose	0.90 (0.81, 0.97)
25	0.28	DCP/Lactose	0.93 (0.89, 0.98)
	0.28	CaCO ₃ /Lactose	0.92 (0.85, 0.97)

The value of all the constant parameters necessary in this work are summarized in Table 5.3 as a function of the type of granular system.

Tableau 5.3 Properties of granular systems

property	CaCO ₃	DCP
ρ (kg/m ³)	0.00063	0.00079
δ (°)	32.1	35.6
ϕ_w (°) ($Ra = 0.28$ μm)	12.8	11.2
ϕ_w (°) ($Ra = 1.2$ μm)	21.7	

The normal force axial profile $\sigma_v(h)$ calculated from Equation (5.27) is illustrated in Figure 5.4 and Figure 5.5 for a DCP/Lactose and a CaCO₃/Lactose free-flowing system, respectively. Keeping in mind that there are no external forces applied to the top surface of the powder, for all conical hoppers (6°, 16° and 25° inclinations), σ_v is proportional to the depth of the powder until a certain depth h , where it begins to decrease until the outlet of the hopper. These results are in agreement with the results found in 1966 by Walker et al. (D. M. Walker, 1966) and by Abdulbooben et al. in 2010. (Faqih et al., 2010) The discontinuity in the mean normal stress profile is explained physically by the change in the stress state (active to passive) at the transition point. However, it should be noted that at the beginning of the discharge, the passive stress state does not occur in the entire hopper immediately, and the stresses near the hopper outlet are independent of the stresses in the upper part of the hopper. (D. Schulze, 2008)

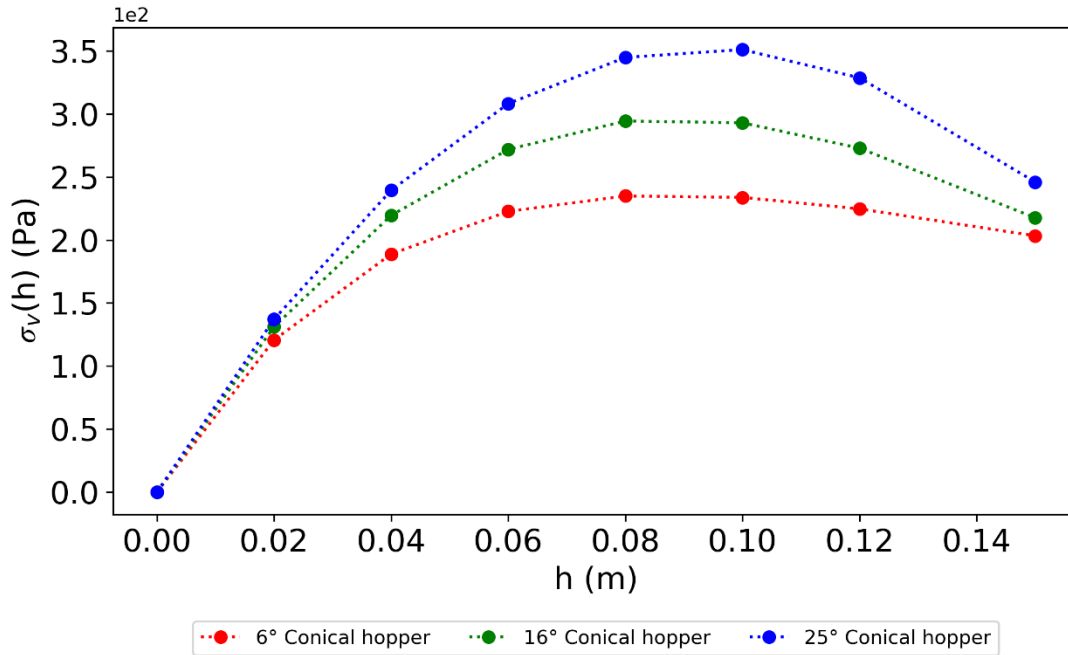


Figure 5.4 Mean normal stress axial profile vs. powder height (h) for DCP/Lactose binary system ($Ra=0.28\mu\text{m}$)

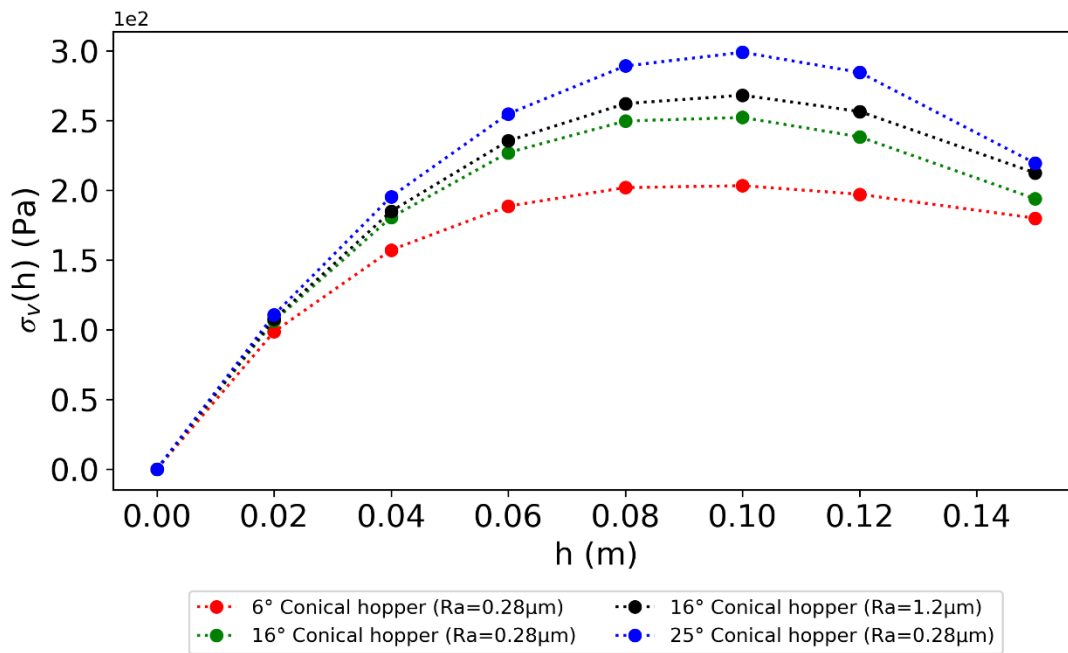
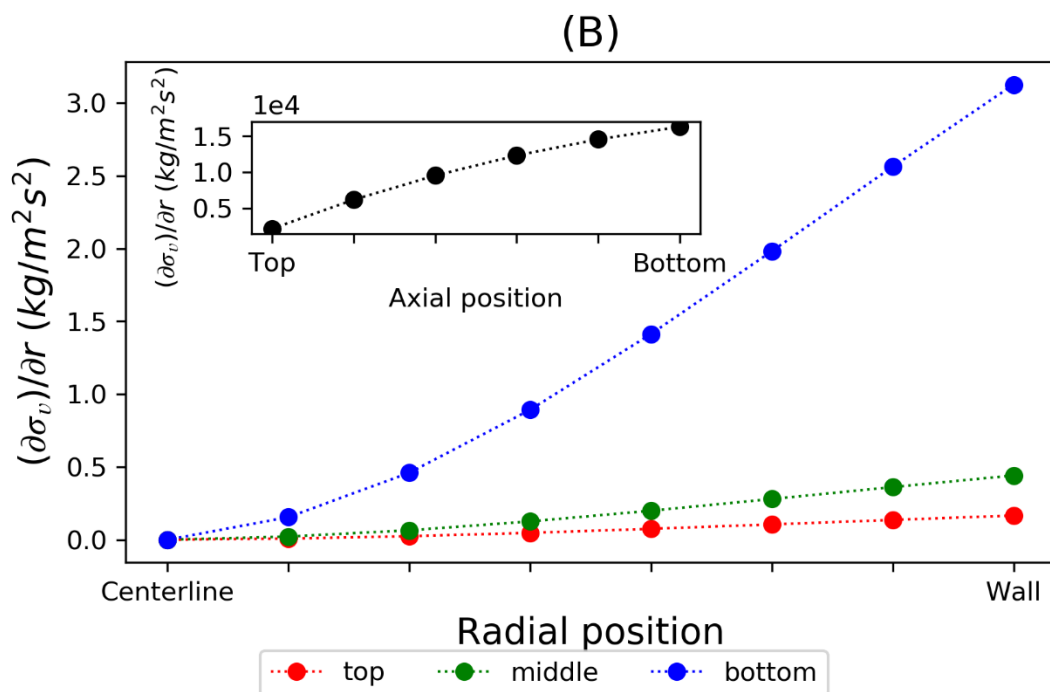
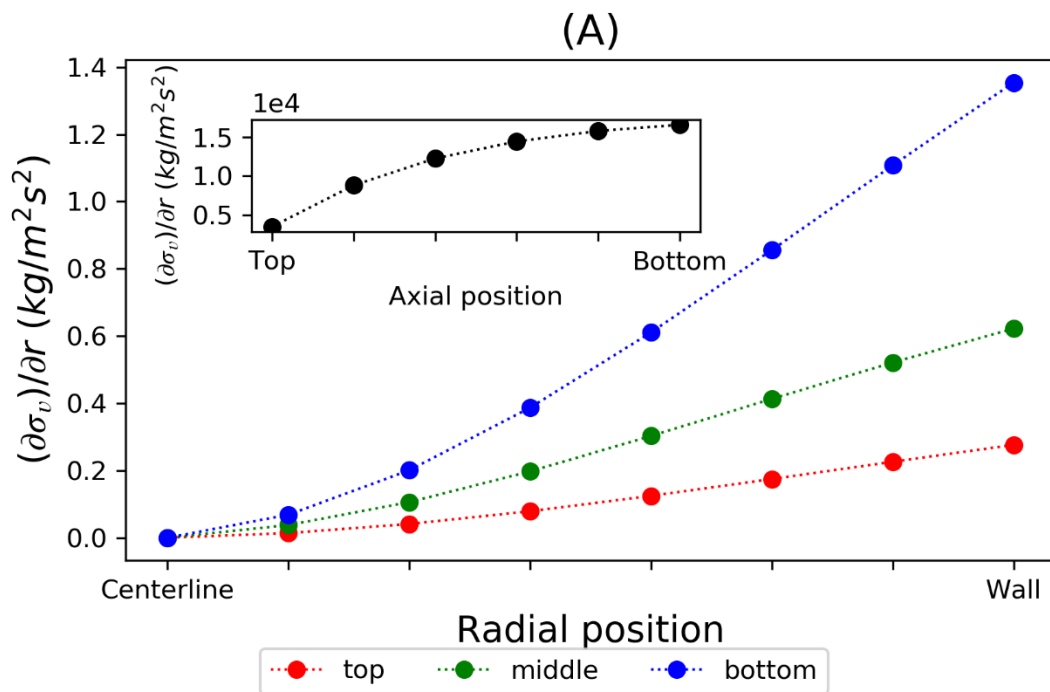


Figure 5.5 Mean normal stress axial profile vs. axial distance (h) for CaCO_3 /Lactose binary system

Figure 5.5 also shows that σ_v is proportional to both the inclination angle of hopper and the roughness of the walls. It is known that the charge of the powder increases as the hopper angle increases (for a given outlet size), which may explain the increase in the normal stress. Thus, the deceleration in the flow velocity is summarized in Table 5.1.

$\frac{\partial \sigma_v}{\partial h}$ is then calculated from the derivative of σ_v values as a function of depth h (Equation 5.27)



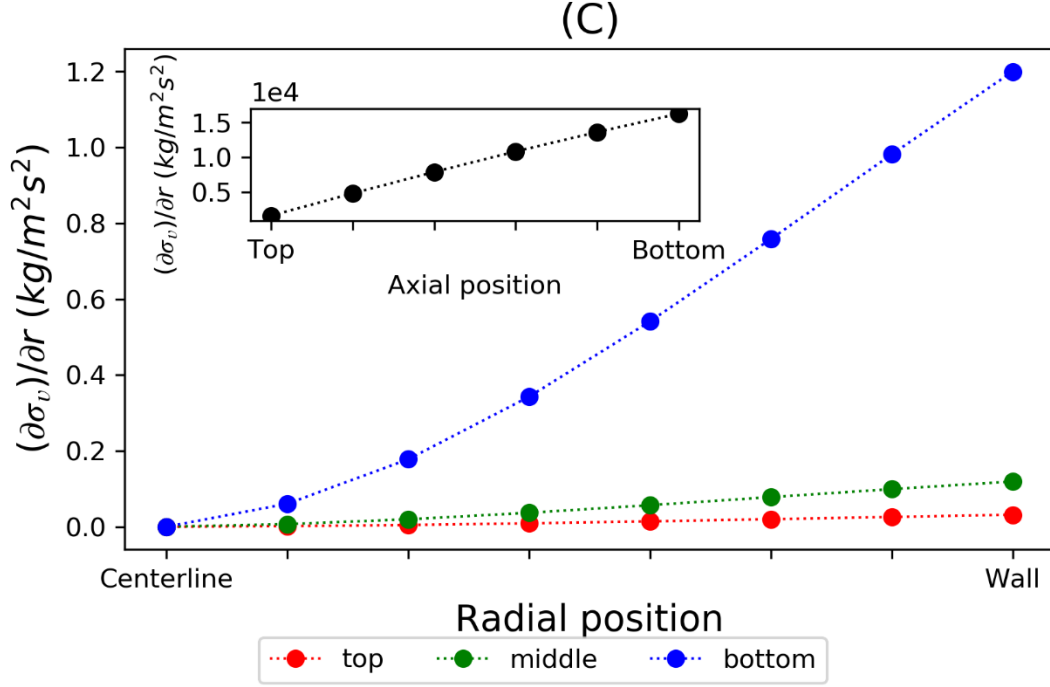


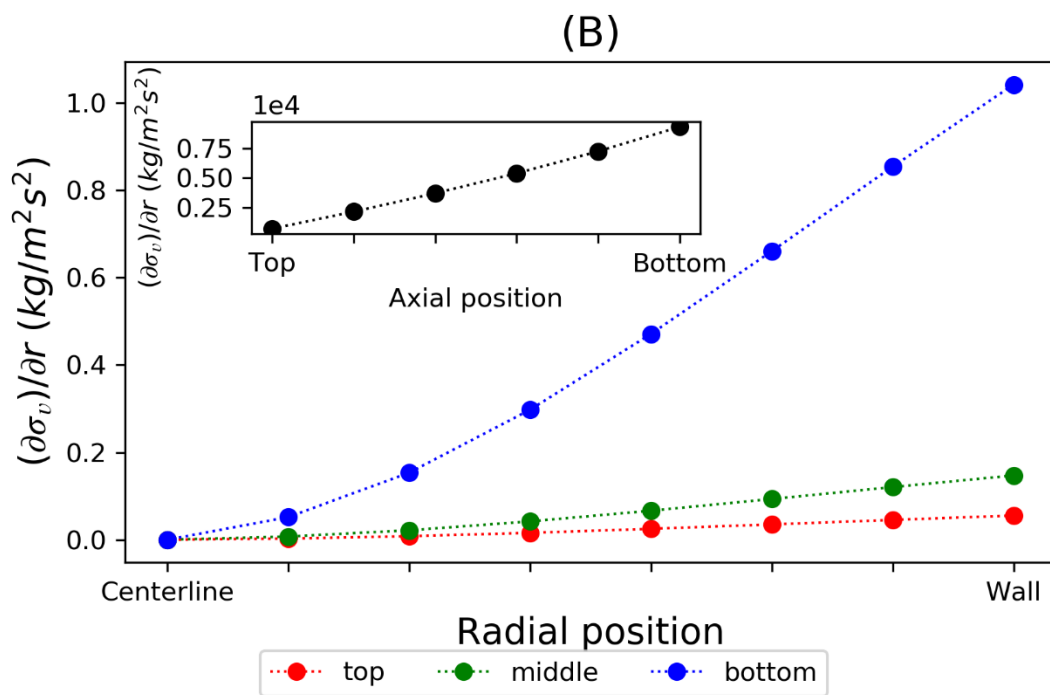
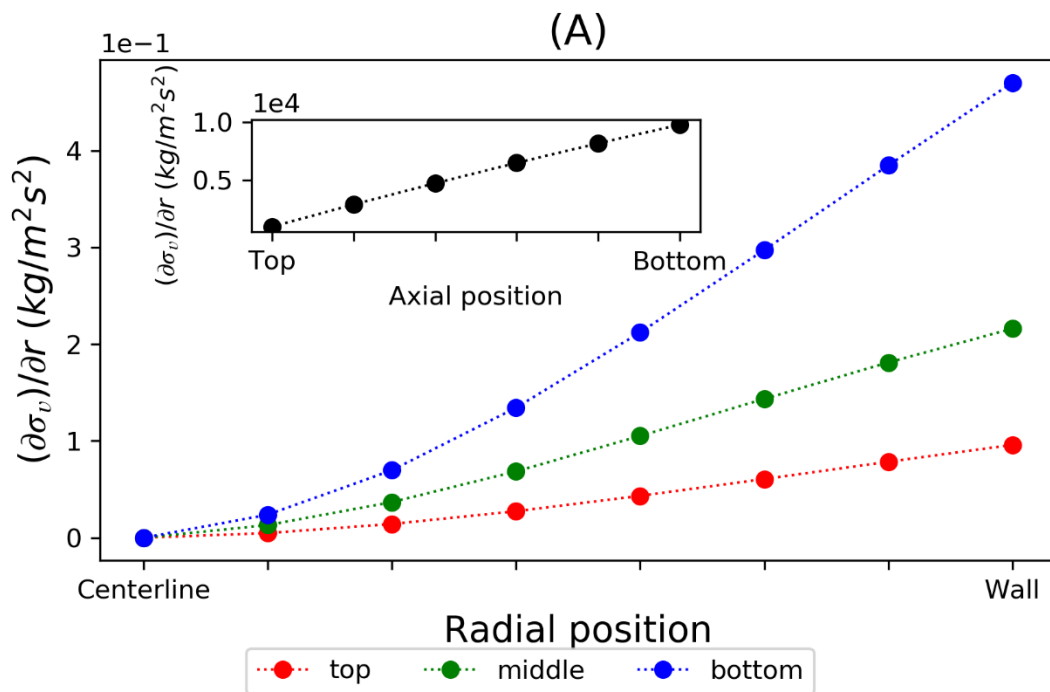
Figure 5.6 Normalized $\left(\frac{\partial\sigma_v}{\partial r}\right)$ vs. Radial position and its central value for DCP/Lactose.

(A) 6° hopper angle, (B) 16° hopper angle, (C) 25° hopper angle

The $\frac{\partial\sigma_v}{\partial r}$ calculated from Equation (5.23) allows the profile of σ_v as a function of radial position r to be predicted at several depths. (Three depths were chosen: top, middle and bottom of the hopper.) Figure 5.6 and Figure 5.7 illustrate the normalized profiles (relative to the centerline value) for the DCP/Lactose and CaCO_3 /Lactose binary systems, respectively. The following facts can be drawn from these figures:

1. In all cases, $\frac{\partial\sigma_v}{\partial r} > 0$ when r goes from 0 to R , indicating that, contrary to the velocity radial profile, σ_v is smaller at the centerline of the hopper ($r = 0$) and achieves its highest value near the wall ($r = R$). This radial profile becomes sharper upon approaching the hopper outlet.
- $\left(\frac{\partial\sigma_v}{\partial r}\right)_{\text{wall}} > \left(\frac{\partial\sigma_v}{\partial r}\right)_{\text{centerline}}$, indicating that the slope of the tangent to the curve is more pronounced close to the wall and becomes less sensitive to the radial position r closer to

the centerline of the hopper. It should be noted that the interaction between the particles and the wall disappears gradually as particles move away from the wall, while the interactions between particles intensify. Thus, in discharge conditions, the granular system is supported by the hopper's inclined wall, resulting in a strong increase in the normal stress near to the wall. The radial profile becomes more pronounced closer to the hopper outlet compared to the upper part of the conical hopper.



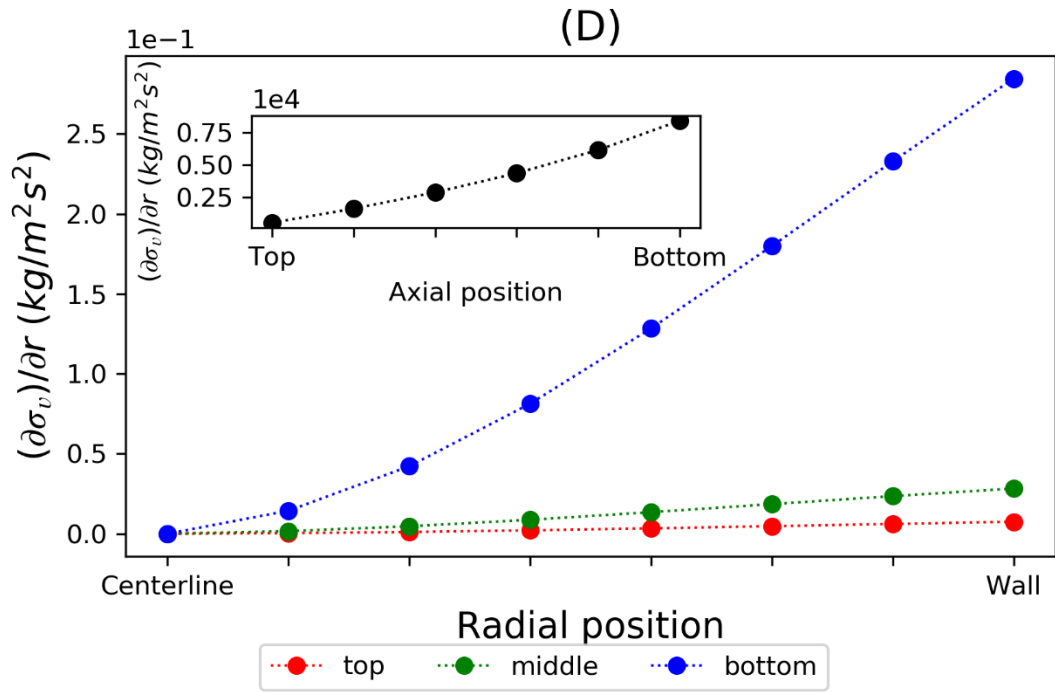
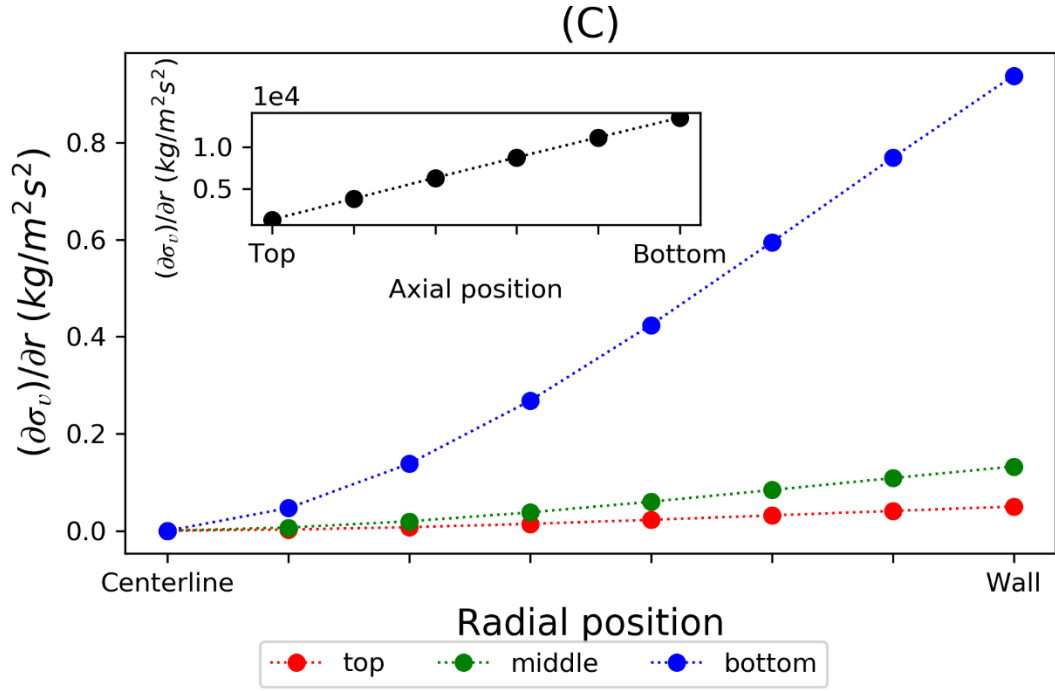


Figure 5.7 Normalized $\left(\frac{\partial\sigma_v}{\partial r}\right)$ vs. Radial position and its central value for $\text{CaCO}_3/\text{Lactose}$.

(A) 6° hopper angle, (B) 16° hopper angle, (C) 16° hopper angle ($R_a=1.2\mu\text{m}$), (D) 25° hopper angle

Conclusion

In this work, we have developed a mathematical model linking axial and radial normal stresses with velocity flow profiles using a semi-empirical equation developed in a previous work (O. Chaib et al.). The methodology used herein consists of studying the distribution of applied forces during the hopper discharge, inspired by the Janssen analysis and Newton's law of motion. Some boundary conditions are assumed: a constant bulk density and no forces applied to the top of surface. The results include:

- For conical hoppers, the mean normal stresses increase in the downward direction until a certain depth is reached, from which they decrease to approach zero at the hopper outlet.
- The model predicting axial and radial normal stresses indicates that, contrary to the velocity radial profile, the normal stress profile is proportional to the radial position. The radial profile becomes more pronounced closer to the hopper outlet compared to the upper part of the conical hopper

Although the results provided from the mathematical model presented in Equation (5.23) are in agreement with previous works, (A. W. Jenike, 1964b; Moreea & Nedderman, 1996; Watson & Rotter, 1996) a device for the direct measurement of the radial and axial profiles of both mean velocity and mean vertical stress inside the hopper would facilitate prediction. The proposed model should also be verified for granular systems.

Acknowledgments

The authors are indebted to Pfizer Canada, the National Science & Engineering Research Council of Canada and Université de Sherbrooke for their financial and material support. The technical assistance of Serge Gagnon, Marc Couture and Henry Gauvin is gratefully acknowledged.

Chapitre 6 CONCLUSION

6.1 Conclusion générale

Les objectifs posés au début de ce projet ont été atteints en grande partie. Le premier objectif portait sur le développement d'une nouvelle équation semi-empirique pour prédire le profil radial de la vitesse d'écoulement des systèmes granulaires à écoulement libre. La présente équation a été inspirée à partir de l'équation utilisée pour prédire le profil radial de vitesse d'écoulement des fluides classiques. Dans le cas des écoulements granulaires, leur vitesse d'écoulement dépend fortement des propriétés de cohésion et d'adhésion. Dans cette perspective, nous avons proposé l'introduction de ces propriétés dans l'équation développée sous forme d'angle de friction interne et angle de friction entre les particules et la paroi de trémies. Un autre paramètre important nommé « ω » a été aussi introduit dans l'équation pour exprimer l'effet de l'angle d'inclinaison de trémie sur le profil radiale.

Il a été prouvé que le profil radial de vitesse d'écoulement pourrait être prédit expérimentalement par la méthode d'injection pulsée, largement utilisé dans l'ingénierie des réacteurs chimiques, en utilisant la distribution du temps de résidence moyen et sa variance. La méthodologie consiste à introduire une poudre discrète appelée « poudre pulsée » à l'intérieur d'un lit d'une autre poudre et mesurer sa concentration à la sortie de trémie à l'aide de la spectroscopie proche infrarouge « NIRS ».

L'équation semi-empirique proposée a été validée à l'aide de la méthode de régression non linéaire. Nous avons déterminé que le paramètre « ζ » est indépendant des caractéristiques étudiées (angle d'inclinaison, type de poudre à écoulement libre et rugosité de parois) et a été fixé à $2,53 \pm 0,01$. En revanche, le paramètre « ω » présente une dépendance importante de l'angle de trémie à des inclinaisons plus faibles (6 et 16 °), à une inclinaison plus élevée (25 °), ce paramètre devient constant et indépendant de ce dernier.

Le deuxième objectif portait sur le développement d'un nouveau modèle mathématique reliant les contraintes normales axiales et radiales aux profils de vitesse d'écoulement développée dans la première partie de ce travail. Pour cela, la méthodologie utilisée consiste à

étudier la distribution de forces pendant l'écoulement gravitationnel à l'intérieur de trémies coniques, elle a été inspirée de l'analyse de *Janssen* utilisée dans les silos cylindriques. Pour cela, certaines conditions limites ont été supposées en considérant une densité apparente constante et aucune force appliquée à la surface supérieure du système granulaire. Le développement a été complété par l'équation de la deuxième loi de *Newton* sur le principe fondamental de la dynamique. Le modèle développé dans cette deuxième partie indique que le profil radial des contraintes normales est proportionnel à la position radiale « r ». Le profil radial devient plus prononcé en descendant vers la sortie de la trémie. Quant au profil axial, la contrainte normale moyenne a deux comportements totalement différents ; dans la partie supérieure de la trémie, la contrainte normale est proportionnelle à la profondeur « h », alors qu'à la partie inférieure elle diminue en s'approchant du zéro à la sortie de la trémie. Ce changement de comportement peut être expliqué par une transition d'état de contraintes de « *actif stress field* » à « *passive stress field* ».

Au niveau industriel, grâce à la méthodologie expérimentale « *pulse input method* » en utilisant NIR spectroscopie comme technique d'analyse, la tendance d'un mélange granulaire à la ségrégation peut être évaluée en comparant la valeur du temps de résidence moyen et sa variance avec un système de référence. Il est également possible de définir le régime d'écoulement des systèmes granulaires grâce à l'équation développée (Équation (3.5)) en comparant les valeurs de vitesse au centre et au paroi de la trémie, le ratio de ces deux vitesses est appelé MFI (Équation (2.1)). En l'occurrence le régime massique, soit $MFI > 0.3$.

6.2 Propositions pour travaux futures

Bien que les objectifs de ce projet de thèse aient été atteints, l'apport scientifique de la nouvelle approche présentée ici ouvre la porte à plusieurs travaux de recherche de validation et d'universalisation des équations mathématiques proposées en mettant en place :

- Différentes conditions expérimentales en changeant :
 - Le type du système granulaire (mélanges multi-composants),
 - La géométrie de trémie (angle, taille d'ouverture, hauteur),

- La rugosité des parois internes.
- Une nouvelle méthodologie expérimentale assurant la facilité de tracer le déplacement du mélange granulaire à différentes hauteurs dans la trémie pendant l'écoulement. Dans notre cas, la méthode expérimentale utilisée était basée sur la mesure de concentration du traceur seulement à la sortie de trémie, elle était donc incapable d'évaluer le comportement du système granulaire en fonction de la hauteur. Pour ce faire, utiliser un nouveau dispositif de mesure devrait être utile.
- Des méthodologies de simulations mathématiques en comparant les résultats obtenus avec le modèle proposé dans ce travail.

Enfin, ce projet de recherche a permis de fournir une nouvelle approche basée sur (1) la prédiction du profil radiale de la vitesse d'écoulement des systèmes granulaires en fonction des propriétés de friction et d'angle de trémie (Équation (4.5)), et (2) la prédiction de profils radiale et axial de la contrainte normale en fonction de la vitesse d'écoulement prédit dans (1) (Équation 5.23). Comme toute nouvelle équation phénoménologique, ces équations semi-empiriques doivent toutefois être réévaluées et éprouvées en profondeur par d'autres chercheurs avant d'être officiellement acceptée et appliquée dans le domaine des systèmes granulaires.

ANNEXE A : SENSIBILITÉ DE LA SONDE NIR

Le choix de 61 points est basé sur la sensibilité de la sonde NIR. Le protocole suivant a été réalisé afin de calculer la surface effective détectée par la sonde :

(1) Préparer des disques noirs (Figure 1) entre 0.9 mm et 10 mm de diamètre, sachant que le diamètre de la sonde NIR utilisée dans ce travail est de 9 mm. (2) Mettre chacun des disques sur la sonde et faire une acquisition de spectre d'absorption sur une plage de longueur d'onde entre 1350 et 1800 μm .

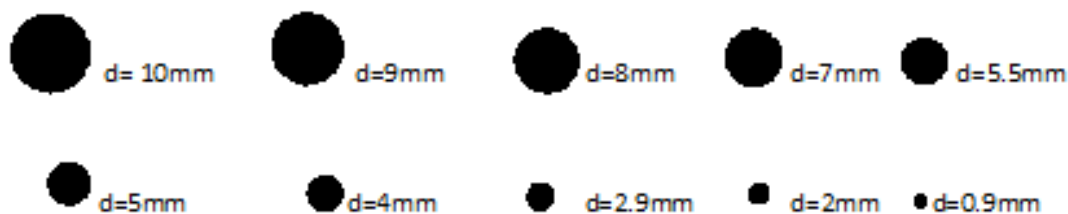


Figure 6.1 Disques noirs pour le test de la surface analysée par la sonde NIR

Les résultats obtenus à partir de ces expériences sont illustrés dans la figure (2). Les valeurs d'absorbance augmentent lorsque le diamètre du cercle noir va de 0.9 jusqu'à 4mm à partir de laquelle ces valeurs restent constantes (5-10mm de diamètre). Donc à partir de ces résultats, on a conclu que la sonde est capable de détecter que 4.5mm de diamètre au lieu de 9 mm.

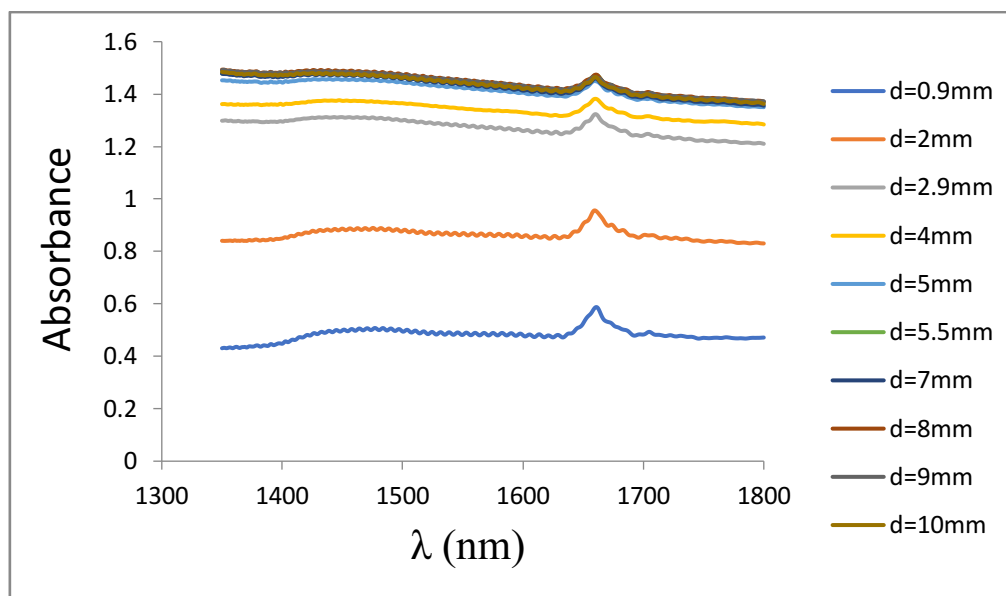


Figure 6.2 Spectre d'absorption des dix points noirs en fonction de leur diamètre

Afin de bien quantifier les profils de distribution des mélanges granulaires, il a été décidé d'augmenter la résolution de la sonde NIR par superposition des zones acquises. Dans ce cas, on a choisi 61 points pour maximiser la surface analysée sur le collecteur (47 mm de diamètre).

ANNEXE B Quantification de la composition du mélange homogène par la sonde NIR

La surface totale d'acquisition est de 55.90 % par rapport à la surface totale collectée. Si on a 61 points de 4.5 mm de diamètre répartis sur n étapes d'échantillonnage avec la guillotine, chaque spectre acquis correspond à une concentration Y mesurée à partir de la courbe d'étalonnage. Afin de mesurer la composition globale du mélange granulaire, la masse de poudre collectée à chaque étape a été homogénéisée et pesée. Le calcul a été fait comme suit :

Considérant un mélange homogène de poudre A (traceur) et poudre B (lit de poudre), à partir de la courbe de calibration, on peut écrire :

$$Y_{A-prédit} = X_A \times Beta \quad (1)$$

X_A : Absorbance de la poudre (A), et $Y_{A-pré}$ est la concentration massique de la poudre (A).

$$Y_{A-pré} = \frac{m_A}{m_{(A+B)collectée}} \times 100\% \quad (2)$$

Si $m_{(A+B)collectée}$ est la masse de la poudre collectée, la masse de la poudre (A) est calculée à partir de l'équation suivante :

$$m_A = \frac{Y_{A-pré} \times m_{(A+B)collectée}}{100} \quad (3)$$

La somme de m_A calculée à partir de l'équation (3) pendant l'écoulement granulaire doit être plus au moins égale à la quantité initiale de la poudre (A) introduite dans la trémie.

ANNEXE C Codes de traitement des données par Matlab R2016b

(1) Traitement PLS:

(1.1) Calibration

X est la valeur de l'absorbance

Y est la concentration (%)

```
[X] = fct_snv(x);  
[m,n] = size(X);  
mx = mean(X);  
X = (X-mx(ones(m,1),:));  
  
[Y,Ymean,Ystd] = fct_auto(y);  
  
nbPC =2;  
  
[T P W C U B SSX SSY] = fct_PLS(X,Y,nbPC);  
SSX  
SSY
```

(1.2) Prédiction de Y à partir de X:

$Wstar = W \cdot inv(P' \cdot W);$

$BetaPLS = Wstar \cdot B \cdot C';$

$Ypre = X \cdot BetaPLS;$
 $Ypre_reel = (Ypre \cdot Ystd) + Ymean;$

$Y_moy = mean(Y);$
 $SSe = sum((Y - Ypre).^2);$
 $SSr = sum((Ypre - Ymean).^2);$
 $SSt = sum((Y - Ymean).^2);$

$R = 1 - (SSe / SSt)$

(1.3) Prédiction après écoulement:

`data = load('écoulementconique.20%.mat');`

```
xetape = [];  
xetape(:,11) = data.xetape11;  
xetape(:,12) = data.xetape12;
```

```
xetape(:,13) = data.xetape13;
xetape(:,14) = data.xetape14;
xetape(:,15) = data.xetape15;
xetape(:,16) = data.xetape16;
xetape(:,17) = data.xetape17;
```

```
Y_flow = [];
for i=11:17;
```

```
X = xetape(:,i);
```

```
X = fct_snv(X);
[m,n] = size(X);
X = (X-mx(ones(m,1),:));
```

```
y = X*BetaPLS;
```

```
y_flow=(y*Ystd)+Ymean;
```

```
Y_flow = [Y_flow y_flow];
end
```

```
Y_flow
```

(2) La méthode de régression non linéaire :

```
data = xlsread('donnees equation.xlsx', 'velocitydcp', 'a2:d6');
disp('***** NON-LINEAR REGRESSION ***** ')
position = data(:,3);
V = data(:,1);
x= data(:,4);
%% Method 1
disp('-----')
disp('Method 1')
```

```
f = fit( position, V, '(1 - (0.22.^(x)) .* (omega.*0.53.^(1-x)) .* ((x).^zeta))', 'StartPoint',
[1,0.1])
```


RÉFÉRENCES

- Abatzoglou, N., Castellanos Gil, E., & Gosselin, R. (2014). Influence of hopper geometry on radial and axial concentration profiles of segregated and homogenized granular mixture flows. *Powder Technology*, 262, 42–50. <https://doi.org/10.1016/J.POWTEC.2014.04.051>
- Abatzoglou, N., & Simard, J. S. (2005). Prediction of segregation tendency occurrence in dry particulate pharmaceutical mixtures: Development of a mathematical tool adapted for granular systems application. *Pharmaceutical Development and Technology*. <https://doi.org/10.1081/PDT-200035920>
- Al-Din, N., & Gunn, D. J. (1984). The flow of non-cohesive solids through orifices. *Chemical Engineering Science*, 39(1), 121–127. [https://doi.org/10.1016/0009-2509\(84\)80137-2](https://doi.org/10.1016/0009-2509(84)80137-2)
- Albaraki, S., & Antony, S. J. (2014). How does internal angle of hoppers affect granular flow? Experimental studies using digital particle image velocimetry. *Powder Technology*, 268(1), 253–260. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2014.08.027>
- Anand, A., Curtis, J. S., Wassgren, C. R., Hancock, B. C., & Ketterhagen, W. R. (2009). Predicting discharge dynamics of wet cohesive particles from a rectangular hopper using the discrete element method (DEM). *Chemical Engineering Science*, 64(24), 5268–5275. <https://doi.org/10.1016/j.ces.2009.09.001>
- Artega, P., & Tüzün, U. (1990). Flow of binary mixtures of equal-density granules in hoppers-size segregation, flowing density and discharge rates. *Chemical Engineering Science*, 45(1), 205–223. [https://doi.org/10.1016/0009-2509\(90\)87093-8](https://doi.org/10.1016/0009-2509(90)87093-8)
- Artoni, R., Zugliano, A., Primavera, A., Canu, P., & Santomaso, A. (2011). Simulation of dense granular flows : Comparison with experiments. *Chemical Engineering Science*, 66(3), 548–557. <https://doi.org/10.1016/j.ces.2010.11.029>
- Bagster, D. F. (1996). Studies on the effect of moisture content and coarse and fine particle concentration on segregation in bins. *KONA Powder and Particle Journal*, 14(May), 138–143. <https://doi.org/10.14356/kona.1996019>
- Benedetti, C., Abatzoglou, N., Simard, J. S., McDermott, L., Léonard, G., & Cartilier, L.

- (2007). Cohesive, multicomponent, dense powder flow characterization by NIR. *International Journal of Pharmaceutics*, 336(2), 292–301.
<https://doi.org/10.1016/j.ijpharm.2006.12.014>
- Bridgwater, J. (2012). Mixing of powders and granular materials by mechanical means—A perspective. *Particuology*, 10(4), 397–427.
<https://doi.org/10.1016/J.PARTIC.2012.06.002>
- Castellanos Gil, E., Gosselin, R., & Abatzoglou, N. (2012). NIRS methodology for measuring radial and axial concentration profiles in flowing granular mixtures. *Powder Technology*, 224, 223–232. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2012.02.057>
- Choi, J., Kudrolli, A., & Bazant, M. Z. (2005). Velocity profile of granular flows inside silos and hoppers. *Journal of Physics Condensed Matter*, 17(24), 17.
<https://doi.org/10.1088/0953-8984/17/24/011>
- Cleaver, J. A. S., & Nedderman, R. M. (1993a). Measurement of velocity profiles in conical hoppers. *Chemical Engineering Science*. [https://doi.org/10.1016/0009-2509\(93\)81027-S](https://doi.org/10.1016/0009-2509(93)81027-S)
- Cleaver, J. A. S., & Nedderman, R. M. (1993b). Measurement of velocity profiles in conical hoppers. *Chemical Engineering Science*, 48(21), 3703–3712.
[https://doi.org/10.1016/0009-2509\(93\)81027-S](https://doi.org/10.1016/0009-2509(93)81027-S)
- D. M. Walker. (1966). An approximate theory for pressures and arching in hoppers. *Chemical Engineering Science*, 21, 975–997.
- Deng, T., Paul, K. a., Bradley, M. S. a, Immins, L., Preston, C., Scott, J. F., & Welfare, E. H. (2010). Investigations on air induced segregation of pharmaceutical powders and effect of material flow functions. *Powder Technology*, 203(2), 354–358.
<https://doi.org/10.1016/j.powtec.2010.05.028>
- Ely, D., ChamCarthy, S., & Carvajal, M. T. (2006). An investigation into low dose blend uniformity and segregation determination using NIR spectroscopy. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 288(1–3), 71–76.
<https://doi.org/10.1016/j.colsurfa.2006.04.032>

- Engblom, N., Saxén, H., Zevenhoven, R., Nylander, H., & Enstad, G. G. (2012a). Effects of process parameters and hopper angle on segregation of cohesive ternary powder mixtures in a small scale cylindrical silo. *Advanced Powder Technology*.
<https://doi.org/10.1016/j.apr.2011.06.003>
- Engblom, N., Saxén, H., Zevenhoven, R., Nylander, H., & Enstad, G. G. (2012b). Segregation of construction materials in silos. Part 1: Experimental findings on different scales. *Particulate Science and Technology*. <https://doi.org/10.1080/02726351.2011.553880>
- Engblom, Niklas, Saxén, H., Zevenhoven, R., Nylander, H., & Enstad, G. G. (2012). Segregation of powder mixtures at filling and complete discharge of silos. *Powder Technology*, 215–216, 104–116. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2011.09.033>
- Faqih, A. N., Chaudhuri, B., Mehrotra, A., Tomassone, M. S., & Muzzio, F. (2010). Constitutive model to predict flow of cohesive powders in bench scale hoppers. *Chemical Engineering Science*, 65(10), 3341–3351. <https://doi.org/10.1016/j.ces.2010.02.028>
- Freeman technology. (2020). Retrieved from <https://www.freemantech.co.uk/powder-testing/ft4-powder-rheometer-powder-flow-tester/bulk-properties>
- Fu, X., Huck, D., Makein, L., Armstrong, B., Willen, U., & Freeman, T. (2012). Effect of particle shape and size on flow properties of lactose powders. *Particuology*, 10(2), 203–208. <https://doi.org/10.1016/j.partic.2011.11.003>
- Generalov, M. B. (1985). Discharge of bulk materials from apparatus. *Theoretical Foundations of Chemical Engineering*, 9(1), 51–56.
- Gentzler, M., & Tardos, G. I. (2009). Measurement of velocity and density profiles in discharging conical hoppers by NMR imaging. *Chemical Engineering Science*, 64(22), 4463–4469. <https://doi.org/10.1016/j.ces.2009.08.010>
- Gupta, A., Nag, S., & Tathavadkar, V. (2012). Predicting flow mode in cylindrical hopper. *International Journal of Mineral Processing*, 110–111, 135–139.
<https://doi.org/10.1016/J.MINPRO.2012.03.010>
- He, X., Han, X., Ladyzhynsky, N., & Deanne, R. (2013). Assessing powder segregation

- potential by near infrared (NIR) spectroscopy and correlating segregation tendency to tableting performance. *Powder Technology*, 236, 85–99.
<https://doi.org/10.1016/j.powtec.2012.05.021>
- Humby, S., Tüzün, U., & Yu, a. B. (1998). Prediction of hopper discharge rates of binary granular mixtures. *Chemical Engineering Science*, 53(3), 483–494.
[https://doi.org/10.1016/S0009-2509\(97\)00326-6](https://doi.org/10.1016/S0009-2509(97)00326-6)
- Jenike, A. (1964). Storage and Flow of Solids, Bulletin No. 123. *Utah Engineering Experiment Station*. <https://doi.org/10.2172/5240257>
- Jenike, A. W. (1964a). Steady gravity flow of frictional-cohesive solids in converging channels. *Journal of Applied Mechanics*, 31(1), 5–10. <https://doi.org/10.1115/1.3629571>
- Jenike, A. W. (1964b). Steady gravity flow of frictional-cohesive solids in converging channels. *Journal of Applied Mechanics, Transactions ASME*, 31(1), 5–11.
<https://doi.org/10.1115/1.3629571>
- Jenike, A. W. (1967). Quantitative design of mass-flow bins. *Powder Technology*, 1(4), 237–244. [https://doi.org/10.1016/0032-5910\(67\)80042-1](https://doi.org/10.1016/0032-5910(67)80042-1)
- Johanson, J. R. (1964). Stress and velocity fields in the gravity flow of bulk solids. *Journal of Applied Mechanics*, 31(3), 499–506. <https://doi.org/10.1115/1.3629668>
- Ketterhagen, W. R., Curtis, J. S., Wassgren, C. R., & Hancock, B. C. (2008). Modeling granular segregation in flow from quasi-three-dimensional, wedge-shaped hoppers. *Powder Technology*, 179(3), 126–143. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2007.06.023>
- Ketterhagen, W. R., Curtis, J. S., Wassgren, C. R., & Hancock, B. C. (2009). Predicting the flow mode from hoppers using the discrete element method. *Powder Technology*, 195(1), 1–10. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2009.05.002>
- Ketterhagen, W. R., Curtis, J. S., Wassgren, C. R., Kong, A., Narayan, P. J., & Hancock, B. C. (2007a). Granular segregation in discharging cylindrical hoppers: A discrete element and experimental study. *Chemical Engineering Science*, 62(22), 6423–6439.
<https://doi.org/10.1016/J.CES.2007.07.052>

- Ketterhagen, W. R., Curtis, J. S., Wassgren, C. R., Kong, A., Narayan, P. J., & Hancock, B. C. (2007b). Granular segregation in discharging cylindrical hoppers: A discrete element and experimental study. *Chemical Engineering Science*, 62(22), 6423–6439.
<https://doi.org/10.1016/j.ces.2007.07.052>
- Khelil, A., & Roth, J.-C. (1990). Spécification des charges et des écoulements dans les silos métalliques. *Revue Française de Géotechnique*, (52), 11–25.
<https://doi.org/10.1051/geotech/1990052011>
- Knodel, P., Tan, S.-A., & Fwa, T.-F. (1991). Influence of voids on density measurements of granular materials using gamma radiation techniques. *Geotechnical Testing Journal*, 14(3), 257. <https://doi.org/10.1520/GTJ10570J>
- Litwiniszyn, J. (1961). Statistical methods in the mechanics of granular bodies. *Rheologica Acta*, 1(4–6), 414. <https://doi.org/10.1007/BF01989080>
- Liu, P., LaMarche, C. Q., Kellogg, K. M., & Hrenya, C. M. (2016). Fine-particle defluidization: Interaction between cohesion, Young's modulus and static bed height. *Chemical Engineering Science*, 145, 266–278.
<https://doi.org/10.1016/j.ces.2016.02.024>
- Maiti, R., Das, G., & Das, P. K. (2016). Experiments on eccentric granular discharge from a quasi-two-dimensional silo. *Powder Technology*, 301, 1054–1066.
<https://doi.org/10.1016/J.POWTEC.2016.07.054>
- Medina, A., Córdova, J. A., Luna, E., & Treviño, C. (1998). Velocity field measurements in granular gravity flow in a near 2D silo. *Physics Letters, Section A: General, Atomic and Solid State Physics*, 250(1–3), 111–116. [https://doi.org/10.1016/S0375-9601\(98\)00795-6](https://doi.org/10.1016/S0375-9601(98)00795-6)
- Montgomery, D. C. (2012). *Design and Analysis of Experiments: Eight Edition*. Wiley.
- Moreea, S. B. M., & Nedderman, R. M. (1996). Exact stress and velocity distributions in a cohesionless material discharging from a conical hopper. *Chemical Engineering Science*, 51(16), 3931–3942. [https://doi.org/10.1016/0009-2509\(96\)00248-5](https://doi.org/10.1016/0009-2509(96)00248-5)
- Mullins, W. W. (1974). Experimental evidence for the stochastic theory of particle flow under

- gravity. *Powder Technology*, 9(1), 29–37. [https://doi.org/10.1016/0032-5910\(74\)80006-9](https://doi.org/10.1016/0032-5910(74)80006-9)
- Nedderman, R. M., & Tüzün, U. (1979). A kinematic model for the flow of granular materials. *Powder Technology*, 22(2), 243–253. [https://doi.org/10.1016/0032-5910\(79\)80030-3](https://doi.org/10.1016/0032-5910(79)80030-3)
- Polderman, H. G., Boom, J., De Hilster, E., & Scott, A. M. (1987). Solids flow velocity profiles in mass flow hoppers. *Chemical Engineering Science*, 42(4), 737–744. [https://doi.org/10.1016/0009-2509\(87\)80033-7](https://doi.org/10.1016/0009-2509(87)80033-7)
- Rahman, M., Shinohara, K., Zhu, H. P., Yu, A. B., & Zulli, P. (2011). Size segregation mechanism of binary particle mixture in forming a conical pile. *Chemical Engineering Science*. <https://doi.org/10.1016/j.ces.2011.08.024>
- Rhodes, M. (2008). Storage and flow of powders Hopper design. In Martin Rhodes chemical engineering; PhD (Ed.), *Introduction to the particle technology-Second edition* (John Wiley, pp. 265–278). <https://doi.org/10.1002/9780470727102>
- Rhodes, M. (2013). *Introduction to Particle Technology (Google eBook)*. Retrieved from <http://books.google.com/books?id=t2K2QFJ5vxkC&pgis=1>
- Saleh, K., Golshan, S., & Zarghami, R. (2018). A review on gravity flow of free-flowing granular solids in silos – Basics and practical aspects. *Chemical Engineering Science*, 192, 1011–1035. <https://doi.org/10.1016/j.ces.2018.08.028>
- Salvas, J., Simard, J. S., & Abatzoglou, N. (2010). Raman spectroscopy to analyze intact pharmaceutical tablets: Factors influencing MVPM-based PAT methods. *American Pharmaceutical Review*, 13(3), 46–53.
- Samadani, A., Pradhan, A., & Kudrolli, A. (1999). Size segregation of granular matter in silo discharges. *Physical Review E - Statistical Physics, Plasmas, Fluids, and Related Interdisciplinary Topics*, 60(6), 7203–7209. <https://doi.org/10.1103/PhysRevE.60.7203>
- Sarraguça, M. C., Cruz, A. V., Soares, S. O., Amaral, H. R., Costa, P. C., & Lopes, J. A. (2010). Determination of flow properties of pharmaceutical powders by near infrared spectroscopy. *Journal of Pharmaceutical and Biomedical Analysis*, 52(4), 484–492. <https://doi.org/10.1016/J.JPBA.2010.01.038>

- Schulmann, R. (2012). Einstein's politics. *The Cambridge Companion to Einstein*, 421–454. <https://doi.org/10.1017/CCO9781139024525.016>
- Schulze, D. (2008). Stresses. In *Powders and bulk solids: Behavior, characterization, storage and flow* (Springer, pp. 249–285). <https://doi.org/10.1002/cite.201090034>
- Schulze, Dietmar, Schwedes, J., & Carson, J. W. (2008). Flow properties of bulk solids. In D. Schulze (Ed.), *Powders and bulk solids: Behavior, characterization, storage and flow* (Springer, pp. 36–73). <https://doi.org/10.1007/978-3-540-73768-1>
- Seil, P., Gómez, J. O., Pirker, S., & Kloss, C. (2012). Numerical and experimental studies on segregation patterns in granular flow from two hoppers. In *ECCOMAS 2012 - European Congress on Computational Methods in Applied Sciences and Engineering, e-Book Full Papers*.
- Shamlou, P. A. (1988). Pressure profiles in bulk solids storage vessels. In *Handling of bulk solids. Theory and Practice* (pp. 20–46). [https://doi.org/10.1016/0032-5910\(89\)80107-x](https://doi.org/10.1016/0032-5910(89)80107-x)
- Shinohara, K., & Golman, B. (2003a). Density segregation of a binary solids mixture during batch operation in a two-dimensional hopper. *Advanced Powder Technology*, 14(3), 333–347. <https://doi.org/10.1163/15685520360685974>
- Shinohara, K., & Golman, B. (2003b). Density segregation of a binary solids mixture during batch operation in a two-dimensional hopper. *Advanced Powder Technology*, 14(3), 333–347. <https://doi.org/10.1163/15685520360685974>
- Shinohara, K., Golman, B., & Nakata, T. (2001). Size segregation of multicomponent particles during the filling of a hopper. *Advanced Powder Technology*, 12(1), 33–43. <https://doi.org/10.1163/156855201744949>
- Shinohara, K., Shoji, K., & Tanaka, T. (1970). Mechanism of segregation and blending of particles flowing out of mass-flow hoppers. *Industrial and Engineering Chemistry Process Design and Development*, 9(2), 174–180. <https://doi.org/10.1021/i260034a003>
- Sielamowicz, I., Blonski, S., & Kowalewski, T. A. (2005). Optical technique DPIV in measurements of granular material flows, Part 1 of 3 - Plane hoppers. *Chemical*

- Engineering Science*, 60(2), 589–598. <https://doi.org/10.1016/j.ces.2004.07.135>
- Sielamowicz, Irena, Błoński, S., & Kowalewski, T. A. (2006). Digital particle image velocimetry (DPIV) technique in measurements of granular material flows, Part 2 of 3-converging hoppers. *Chemical Engineering Science*, 61(16), 5307–5317. <https://doi.org/10.1016/j.ces.2006.03.002>
- Srivastava, A., & Sundaresan, S. (2003). Analysis of a frictional-kinetic model for gas-particle flow. *Powder Technology*, 129(1–3), 72–85. [https://doi.org/10.1016/S0032-5910\(02\)00132-8](https://doi.org/10.1016/S0032-5910(02)00132-8)
- Tao, H., Jin, B., Zhong, W., Wang, X., Ren, B., Zhang, Y., & Xiao, R. (2010). Discrete element method modeling of non-spherical granular flow in rectangular hopper. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification*, 49(2), 151–158. <https://doi.org/10.1016/j.cep.2010.01.006>
- Tao, H., Zhong, W., & Jin, B. (2014). Flow behavior of non-spherical particle flowing in hopper. *Frontiers in Energy*, 8(3), 315–321. <https://doi.org/10.1007/s11708-014-0331-9>
- Tao, H., Zhong, W., Jin, B., & Ren, B. (2013). DEM simulation of non-spherical granular segregation in hopper. In *AIP Conference Proceedings*. <https://doi.org/10.1063/1.4816925>
- Tian, T., Su, J., Zhan, J., Geng, S., Xu, G., & Liu, X. (2018). Discrete and continuum modeling of granular flow in silo discharge. *Particuology*, 36, 127–138. <https://doi.org/10.1016/j.partic.2017.04.001>
- Tüzün, U., & Nedderman, R. M. (1979). Experimental evidence supporting kinematic modelling of the flow of granular media in the absence of air drag. *Powder Technology*, 24(2), 257–266. [https://doi.org/10.1016/0032-5910\(79\)87044-8](https://doi.org/10.1016/0032-5910(79)87044-8)
- Walters, J. K. (1973). A theoretical analysis of stresses in silos with vertical walls. *Chemical Engineering Science*, 28(1), 13–21. [https://doi.org/10.1016/0009-2509\(73\)85081-X](https://doi.org/10.1016/0009-2509(73)85081-X)
- Wang, Y., & Ooi, J. Y. (2015). A study of granular flow in a conical hopper discharge using discrete and continuum approach. In *Procedia Engineering*.

<https://doi.org/10.1016/j.proeng.2015.01.183>

- Waters, A. J., & Drescher, A. (2000). Modeling plug flow in bins/hoppers. *Powder Technology*, 113(1–2), 168–175. [https://doi.org/10.1016/S0032-5910\(00\)00229-1](https://doi.org/10.1016/S0032-5910(00)00229-1)
- Watson, G. R., & Rotter, J. M. (1996). A finite element kinematic analysis of planar granular solids flow. *Chemical Engineering Science*, 51(16), 3967–3978. [https://doi.org/10.1016/0009-2509\(95\)00392-4](https://doi.org/10.1016/0009-2509(95)00392-4)
- Williams, J. C. (1977). The rate of discharge of coarse granular materials from conical mass flow hoppers. *Chemical Engineering Science*, 32(3), 247–255. [https://doi.org/10.1016/0009-2509\(77\)80202-9](https://doi.org/10.1016/0009-2509(77)80202-9)
- Windows-Yule, K., & Parker, D. (2015). Density-driven segregation in binary and ternary granular systems. *KONA Powder and Particle Journal*, 32(32), 163–175. <https://doi.org/10.14356/kona.2015004>
- Xiao, H., Fan, Y., Jacob, K. V., Umbanhowar, P. B., Kodam, M., Koch, J. F., & Lueptow, R. M. (2019). Continuum modeling of granular segregation during hopper discharge. *Chemical Engineering Science*, 193, 188–204. <https://doi.org/10.1016/J.CES.2018.08.039>
- Yu, Y., & Saxén, H. (2014). Segregation behavior of particles in a top hopper of a blast furnace. *Powder Technology*. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2014.04.010>
- Z. Mroz and CZ. Szymanski. (1971). Gravity flow of a granular material in a converging channel. *Archive of Mechanics*, 897–917.
- Zheng, Q. J., Xia, B. S., Pan, R. H., & Yu, A. B. (2017). Prediction of mass discharge rate in conical hoppers using elastoplastic model. *Powder Technology*, 307, 63–72. <https://doi.org/10.1016/J.POWTEC.2016.11.037>